

Title	導波路形第2高調波発生光デバイスに関する研究
Author(s)	藤村, 昌寿
Citation	大阪大学, 1993, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3065925
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

導波路形第2高調波発生光デバイス
に関する研究

1993年 1月

藤 村 昌 寿

導波路形第2高調波発生光デバイス
に関する研究

1993年 1月

藤 村 昌 寿

内 容 梗 概

本論文は、著者が大阪大学大学院工学研究科電子工学専攻博士課程に在学中、光波電子工学講座（西原研究室）において行った”導波路形第2高調波発生光デバイスに関する研究”をまとめたもので、8章から構成されている。以下、その各章について、内容の梗概を述べる。

第1章 序論

高密度光記録、小型コヒーレント光源のフルカラー化などのために求められている小型短波長コヒーレント光源の実現に対して、導波路形第2高調波発生(SHG)光デバイスがその有望な候補であることを示す。このデバイス実現の研究の現状を概観し、この研究における強誘電体分極反転構造作製の重要性を指摘した上で、本研究の目的と課題を明らかにする。

第2章 SiO₂装荷誘起LiNbO₃分極反転

本章では、本研究において見い出された、SiO₂クラッド層装荷と熱処理によるLiNbO₃の強誘電体分極反転法と、その方法により得られる分極反転グレーティングについて述べる。まず、分極反転の方法とその反転条件、および、得られた分極反転構造の特徴を明らかにする。さらに、分極反転のメカニズムについて検討を行う。また、本研究において見い出された、新たな分極反転構造検査法についても述べる。

第3章 電子ビーム走査LiNbO₃分極反転

本章では、電子ビームの走査によるLiNbO₃分極反転グレーティング作製方法を述べ、得られた分極反転構造の特徴を詳しく調べる。また、グレーティング周期とそのグレーティングを得るための電子ビーム走査条件の関係を明らかにする。電子の過蓄積の影響により、グレーティングの作製面積が制限される

ことを明らかにし、これを避けて長い作用長を得るためのグレーティング作製法について述べる。さらに、分極反転のメカニズムを検討する。

第4章 デバイス性能の理論解析とデバイス設計

導波路形擬似位相整合第2高調波発生デバイスの変換効率を与える一般式に、導波路モードプロファイル計算の結果と分極反転構造を数式化した結果を適用し、 LiNbO_3 基板上に作製したSHGデバイス性能を理論的に解析する。また、作製誤差などのために残留する位相整合誤差を補償するデバイスの構成を示し、その設計手順を確立する。

第5章 緑色光発生用デバイスの作製と評価

本章では、第2、3章で述べた2つの分極反転法で作製した、周期約 $6\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングをもつ緑色光発生用導波路形SHGデバイスの試作と評価について述べる。2つの分極反転法を用いて作製した導波路形SHGデバイスでの、Nd:YAGレーザ光を用いたSHG実験の結果を示すとともに、その結果と理論値との比較検討を行う。

第6章 青色光発生用デバイスの作製と評価

周期約 $3\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングを必要とする青色光発生用SHGデバイスには SiO_2 装荷誘起分極反転法の適用が難しいこと、また、電子ビーム走査分極反転法を適用するには分極反転後に結晶表面層の除去が必要であることを明らかにする。電子ビーム走査分極反転と結晶表面層の除去を行って試作したデバイスによるTi:Al₂O₃レーザ光のSHG実験の結果を示し、その評価を行う。

第7章 半導体レーザ光の第2高調波発生用デバイスの作製と評価

本章では、半導体レーザを端面結合した導波路形SHGデバイスについて述べる。電子ビーム走査分極反転法を用いて作製したデバイスで、半導体レーザ

光のSHG実験を行った結果から，半導体レーザと導波路形第2高調波発生デバイスで構成した，小型短波長コヒーレント光源の実現可能性を検討する。

第8章 結論

本研究で得られた成果を総括し，今後の課題を明らかにする。

導波路形第2高調波発生光デバイスに関する研究

目 次

第1章	序論	1
1.1	研究の背景	1
1.2	SHGデバイス研究の現状と問題点	2
1.3	本研究の目的と課題	7
1.4	本論文の構成	8
第2章	SiO ₂ 装荷誘起LiNbO ₃ 分極反転	10
2.1	緒言	10
2.2	分極反転グレーティングの作製	10
2.2.1	分極反転の方法	10
2.2.2	分極反転構造の特徴	10
2.3	熱処理条件の検討	13
2.4	微細周期グレーティング作製の試み	13
2.5	直流スパッタによる分極反転構造の確認	15
2.6	分極反転メカニズムの検討	16
2.7	結言	17
第3章	電子ビーム走査LiNbO ₃ 分極反転	18
3.1	緒言	18
3.2	分極反転グレーティングの作製	18
3.2.1	分極反転の方法	18
3.2.2	分極反転構造の特徴	20
3.3	電子ビーム走査条件依存性	25
3.4	長相互作用長の実現	27
3.5	裏面非研磨結晶での分極反転	28

3.6	分極反転メカニズムの検討	29
3.7	結言	31
第4章	デバイス性能の理論解析とデバイス設計	33
4.1	緒言	33
4.2	SHG変換効率の理論式	33
4.3	導波路サイズ依存性	41
4.4	分極反転構造依存性	41
	4.4.1 SiO ₂ 装荷誘起分極反転構造での依存性	42
	4.4.2 電子ビーム走査分極反転構造での依存性	46
4.5	クラッド層装荷の影響	50
4.6	相互作用長依存性	51
4.7	デバイス設計	53
4.8	結言	57
第5章	緑色光発生用デバイスの作製と評価	59
5.1	緒言	59
5.2	作製	59
5.3	プロトン交換による分極反転グレーティング構造の 消滅	61
5.4	SiO ₂ 装荷誘起分極反転を用いたデバイスでの 第2高調波発生実験	62
	5.4.1 実験結果	62
	5.4.2 理論値との比較検討	65
5.5	電子ビーム走査分極反転を用いたデバイスでの 第2高調波発生実験	66
	5.5.1 第2高調波発生実験	66
	5.5.2 理論値との比較検討	68

5.6	結言	68
第6章	青色光発生用デバイスの作製と評価	70
6.1	緒言	70
6.2	2次擬似位相整合第2高調波発生	71
6.3	1次擬似位相整合第2高調波発生	72
	6.3.1 デバイス作製	72
	6.3.2 第2高調波発生実験	73
	6.3.3 理論値との比較検討	75
	6.3.4 光損傷の影響	76
6.4	結言	77
第7章	半導体レーザ光の第2高調波発生用デバイスの 作製と評価	79
7.1	緒言	79
7.2	Ti:Al ₂ O ₃ レーザによる予備実験	79
7.3	半導体レーザ光の第2高調波発生実験	79
7.4	結言	83
第8章	結論	85
	謝辞	89
	参考文献	90
	関連発表論文	98

第1章 序論

1.1 研究の背景

近年の赤外半導体レーザの普及はめざましく、コンパクトディスクプレーヤ、光磁気ディスク装置のような光記録／読出し装置や、レーザプリンタなどの多くの製品に組み込まれて用いられている。しかし、光記録の分野では、さらに高い記録密度を達成するために緑色または青色の光を発する小型短波長コヒーレント光源の実現に対する要求が新たに生じている。なぜなら、緑や青の光は赤外光に比べ、約1/2の波長、約1/4の回折限界スポット面積を持つので、そのような光源を用いることにより光記録媒体の記録密度を4倍程度向上させることができるからである。また、小型レーザ光源のRGBフルカラー化にともない、カラーレーザプリンタなどの大幅な性能向上が期待できることから、製版・印刷の分野でも同様の要求が生じている。このような要求の下、緑色または青色の光を発する小型短波長コヒーレント光源の実現は、オプトエレクトロニクス分野における重要な研究課題となり¹⁾、現在種々の研究機関で研究が行われている。

現在、このような光源実現のためのアプローチとして、

- ① II-VI族半導体を用いた半導体レーザ²⁾⁻⁴⁾、
- ② 半導体レーザからの赤外光を非線形光学効果を用いて2倍の周波数を持つ光に変換する第2高調波発生(Second Harmonic Generation :SHG)デバイス⁵⁾⁻⁷⁾、
- ③ 赤外光エネルギーを複数回連続的に吸収するポンピングで希土類元素などのレーザ媒質中に青／緑の発光を示すレーザ遷移を引き起こすアップコンバージョンレーザ⁸⁾

などがある。①については、II-VI族半導体レーザとして最近CdZnSe単一量子井戸構造を用いての低温パルス発振²⁾、さらには室温パルス発振³⁾が報告されているものの、室温連続発振にはまだ多くの課題を残している。②のSHGデバイスについては、これらのアプローチの中で最も実用化に近いと考えられ、現

在盛んに研究されている。

1.2 SHGデバイス研究の現状と問題点

[SHGデバイス高効率化のための条件] 2次非線形性を示す媒質中に周波数 ω 、波長 λ^ω のポンプ光（電界の複素振幅： \mathbf{E}^ω ）が入射したとき、式(1.1)のような周波数 2ω を持つ非線形分極 $\mathbf{P}^{2\omega}$ が生じる。

$$\mathbf{P}^{2\omega} = d\mathbf{E}^\omega \mathbf{E}^\omega \quad (1.1)$$

この非線形分極がもとになって、周波数 2ω の第2高調波（電界の複素振幅： $\mathbf{E}^{2\omega}$ ）が発生する(SHG)。ここで、式(1.1)中の d は2次非線形光学定数あるいはSHG係数と呼ばれる媒質固有の定数である。SHGの効果が大きく生じるためには ①高いポンプ光パワー密度($\propto |\mathbf{E}^\omega|^2$)、②長い相互作用長、③大きなSHG係数(d)、④ポンプ光とSH光の位相整合の達成が必要である。①②の要求は、光波が狭い領域内に閉じ込められたまま伝搬する導波路構造^{9),10)}を用いることで満たすことができる。よって、大きなSHG係数を持つ材料を用いて導波路形第2高調波発生デバイスを作製し、位相整合が達成できれば、高効率なSHGデバイスが実現できる。

[SHG材料] 導波路形第2高調波発生デバイスに用いる導波路材料として良く用いられているものに、大きなSHG係数を持ち導波路作製技術がほぼ確立されている、ニオブ酸リチウム(LiNbO_3)¹¹⁾⁻³⁰⁾、タンタル酸リチウム(LiTaO_3)³¹⁾⁻³⁵⁾、リン酸チタニル酸カリウム(KTiOPO_4)^{36),37)}のような強誘電体結晶がある。メチルニトロアニリン(MNA)^{38),39)}のようないくつかの有機材料はこれらの強誘電体結晶よりも大きなSHG係数を持つが、導波路作製技術が未確立である。

[位相整合] ポンプ光が伝搬するにつれて、非線形分極波 $\mathbf{P}^{2\omega}$ （伝搬定数： $2\beta^\omega$ ）がもとになって媒質中の各点で第2高調波（伝搬定数： $\beta^{2\omega}$ ）が発生する。強い第2高調波（SH波）パワーを得るためには、各点で発生したSH波の振幅

が同相で累積する必要がある。そのための条件は位相整合条件と呼ばれ、式(1.2)で表される。

$$\beta^{2\omega} - 2\beta^{\omega} = 0 \quad (1.2)$$

ここで、 β^{ω} 、 $\beta^{2\omega}$ はそれぞれ \mathbf{E}^{ω} 、 $\mathbf{E}^{2\omega}$ の伝搬定数である。この条件を伝搬ベクトルのダイアグラムにより表すと図1.1のようになる。式(1.2)は式(1.3)のように変形できる。

$$N^{2\omega} - N^{\omega} = 0 \quad (1.3)$$

ここで、 N^{ω} 、 $N^{2\omega}$ は \mathbf{E}^{ω} 、 $\mathbf{E}^{2\omega}$ が経験する実効屈折率である。屈折率の波長分散のため式(1.3)の条件は一般には満たされない。そこで、これまで位相整合を満たすためのさまざまな方法が検討されてきた。

導波路形SHGデバイスでの位相整合法として、次のようなものが知られている。それらの方法を図1.2にベクトルダイアグラムを用いて示す。

- 1) 導波路結晶材料の方位と偏光方向の適当な組み合わせを選び、導波路材料の複屈折性を利用してポンプ光とSH光の伝搬定数を一致させる方法 (図1.2(a))¹¹⁾⁻¹³⁾。
- 2) 導波路のモード分散を用いて、あるモードのポンプ光とモード次数の異なるSH光の伝搬定数を一致させる方法 (図1.2(b))^{14),15),39)}。

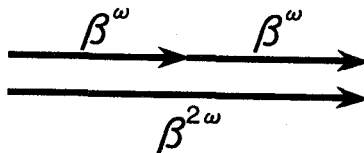
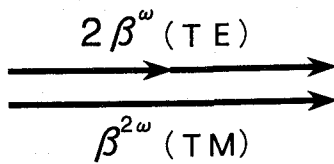
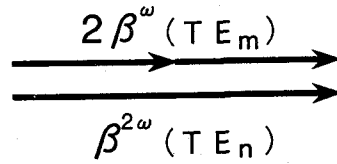


図1.1 第2高調波発生における位相整合

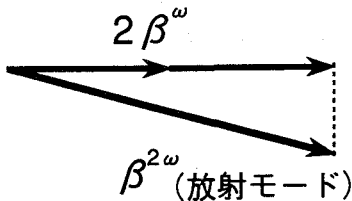
- 3) 放射モードの光波の伝搬定数は連続的な値をとり得るので、SH光が放射モードとなるように基板と導波路の屈折率を選ぶと、位相整合の達成された方向への放射モードSH光を自動的に得ることができる。この方法はチェレンコフ放射形位相整合法と呼ばれる (図1.2(c))^{16),17)}。
- 4) グレーティング構造により位相不整合を補償する擬似位相整合法 (図1.2(d))¹⁸⁾⁻³⁷⁾。



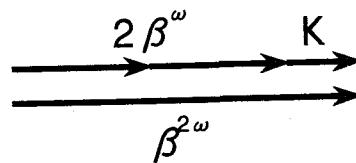
(a) 複屈折性利用



(b) モード分散利用



(c) チェレンコフ放射形



(d) 擬似位相整合
(グレーティングベクトルK)

図1.2 導波路SHGデバイスでの位相整合法

[擬似位相整合] 擬似位相整合法(Quasi-Phase-Matching:QPM)^{40),41)}は、他の位相整合法に比べると、導波路結晶の方位や偏光方向に制限がない、ポンプ光とSH光が同じ導波モードであるのでそれらのモードプロファイルの重なりが大きくでき高効率を期待できる、SH光が導波モードで得られるので出射光の集光が容易である、などの利点を有する。

QPM用のグレーティング周期 Λ は、導波路材料の屈折率分散で式(1.4)のよう

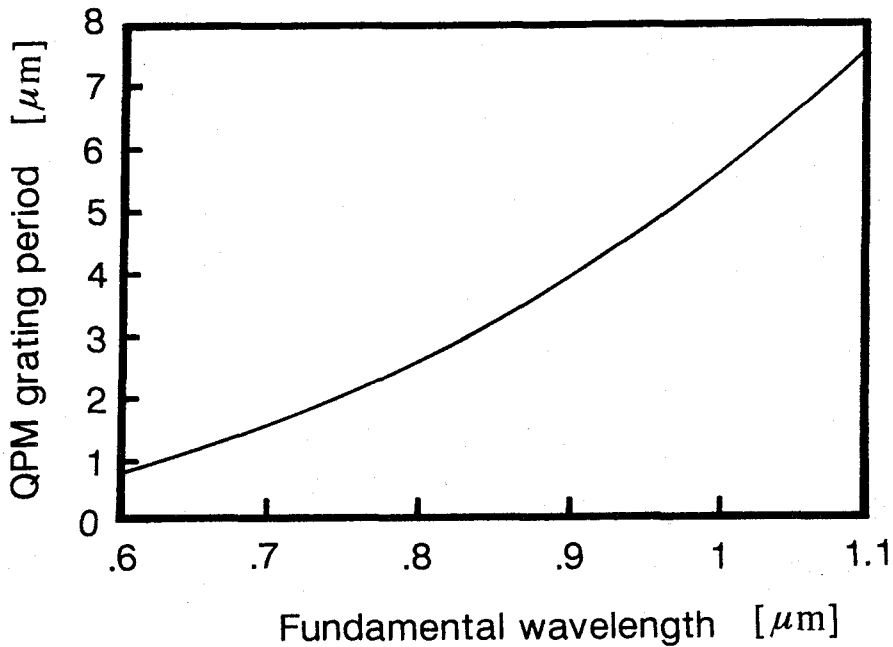


図1.3 式(1.4)が示すQPM周期とポンプ光波長の関係
(LiNbO₃, 異常光線)

に決まる。

$$\Lambda = \frac{\lambda^\omega}{2(N^{2\omega} - N^\omega)} \quad (1.4)$$

N^ω と $N^{2\omega}$ としてLiNbO₃のバルク結晶の異常光線に対する屈折率を用いて式(1.4)を計算すると、図1.3のようになり、可視光発生のためには周期10μm以下のグレーティングが必要であることがわかる。

[分極反転グレーティング] QPMに用いる周期構造としては、非線形結合の大きくとれる、SHG係数の符号を周期的に反転したグレーティングを用いることが有効である。このようなグレーティングは、強誘電体の分極方向が周期的に反転した分極反転グレーティングで実現できる。しかし、周期10μm以下の分極反転グレーティングの作製は容易ではなく、導波路形SHGデバイス作製に

用いられたのは、 LiNbO_3 を基板とした次の二つの報告例があるだけであった。

- 1) Ti内拡散法^{18)-22),42)}： LiNbO_3 の+Z面にTi膜を堆積，キュリー温度付近まで加熱してTiを拡散すると拡散層内で分極反転が生じる。Ti膜をパターン化しておくことで分極反転グレーティングを得ることができる。
- 2) Li_2O 外拡散法^{23),43)}： LiNbO_3 結晶を 1100°C 付近まで加熱すると Li_2O が結晶内部より外部へと拡散する。このとき，+Z面において分極反転が生じる。この Li_2O 外拡散は SiO_2 薄膜を結晶表面に堆積することで抑制することができるので，パターン化 SiO_2 薄膜をマスクとして用いて分極反転グレーティングを得ることができる。

QPM-SHG デバイスの高効率化に対して理想的な分極反転グレーティング構造は，図1.4のように分極反転領域が導波路厚さに比べて十分深く，反転領域と非反転領域の幅が等しい構造である。しかし，上述1)，2)の方法で得られる分極反転構造は図1.5のような浅いV形の断面構造であるために，導波光と分極反転構造の重なりが小さく，高効率デバイスが作製できていない。また，分極反転領域において屈折率変化も生じる問題もあった。このような問題を克服するため，新しい分極反転法に対する検討もいくつか行われており⁴⁴⁾⁻⁵⁰⁾，

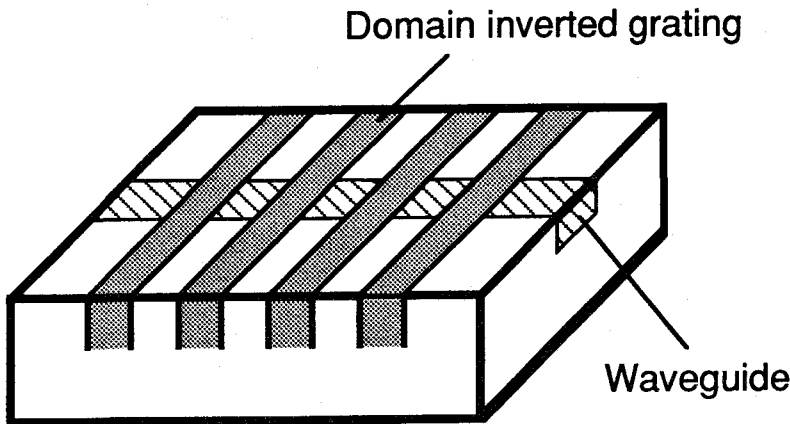


図1.4 理想的なQPM用分極反転グレーティング構造

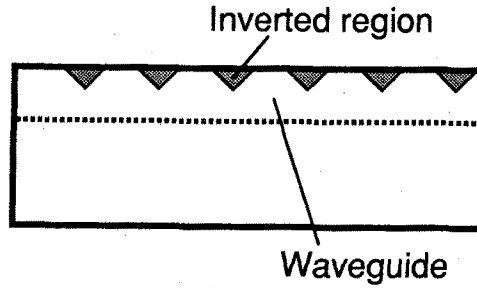


図1.5 従来の方法で得られる分極反転グレーティングの断面構造

ごく最近になって、 LiTaO_3 基板に対するプロトン交換により比較的深い分極反転構造を作製したデバイスで良いSHG実験結果が得られている³⁵⁾。また、 KTiOPO_4 の分極反転も報告がなされた³⁷⁾。

[SHGデバイスの問題点] 導波路形QPM-SHGデバイス実現における現在の問題点は、

- ①分極反転グレーティング作製法の研究がまだ不十分であること、
- ②理論解析、特に分極反転構造を考慮した解析がほとんど行われていないこと、
- ③QPM-SHGデバイスでのグレーティング周期の精度は厳しく、その精度を達成することが難しいこと、などである。

1.3 本研究の目的と課題

[目的] 本研究は、導波路形QPM-SHGデバイスの高効率化を図り、このデバイスによる小型短波長コヒーレント光源実現のための問題点とその可能性を明らかにすることを目的としている。

[課題] 導波路形QPM-SHGデバイスの高効率化のためには、分極反転グレーティングの反転構造が極めて重要である。また、グレーティング周期の作製誤差の影響を排除して、完全な位相整合が達成できるようにする必要がある。

このような要求を満たすため、本研究を始めるにあたり、次のような課題があった。

- 1) 新しいLiNbO₃分極反転グレーティング作製法を探究し、既存の方法と比較して導波路形QPM-SHGデバイスに最適な分極反転法を検討した上で、その作製技術を確立する。

この課題に対し、本研究では、新しいLiNbO₃分極反転法としてSiO₂装荷と熱処理による方法を検討する（第2章）。また、電子ビーム走査による分極反転法の導波路形QPM-SHGデバイスへの適用に初めて着目し、この方法の特徴を詳しく調べて、その適用性を検討する（第3章）。

- 2) 分極反転構造を考慮したデバイス性能の理論解析手法を確立する。

この課題に対して、本研究では、分極反転グレーティング構造をフーリエ展開して簡単な形で表現する手法を用いて、分極反転構造を考慮した理論解析を行う（第4章）。

- 3) 完全な位相整合を達成できるデバイス構成の設計手順を確立する。

この課題に対し、本研究では、扇形構造をした分極反転グレーティングとチャンネル導波路アレーを組み合わせた構成のデバイスを用いることとし、ほぼ完全な位相整合が達成できるデバイスの設計を行う（第4章）。

- 4) デバイスを試作・評価して実用化への問題点と可能性を明らかにする。

この課題に対し、本研究では、緑色光発生用と青色光発生用のデバイスを試作し、SHG実験を行うことにより、デバイス性能を評価する（第5,6章）。また、より実用デバイスに近い構成の、半導体レーザをポンプ光源として用いたSHG実験を行い、実用化への問題点と可能性を明らかにする（第7章）。

1.4 本論文の構成

図1.6に本論文の構成を示すブロックダイアグラムを示す。第2章では、本研究で見い出されたSiO₂装荷誘起LiNbO₃分極反転法について述べる。第3章では、電子ビーム走査によるLiNbO₃分極反転法について、導波路形SHGデバイスへの適用を念頭に置いて、その構造の特徴を調べた結果を述べる。第4章では、

分極反転構造を考慮したデバイス性能の理論解析を行い、その結果をもとにしてデバイス設計を行う。第5章では、緑色光発生用デバイスの作製と、Nd:YAGレーザを用いて行ったSHG実験の結果について述べる。第6章では、電子ビーム走査分極反転法を用いた青色光発生用デバイスの作製と、Ti:Al₂O₃レーザを用いたSHG実験の結果とその評価について述べる。第7章では、光源として半導体レーザを用いたSHG実験について述べる。第8章では、本研究において得られた成果を総括するとともに、今後の問題点・課題を指摘する。

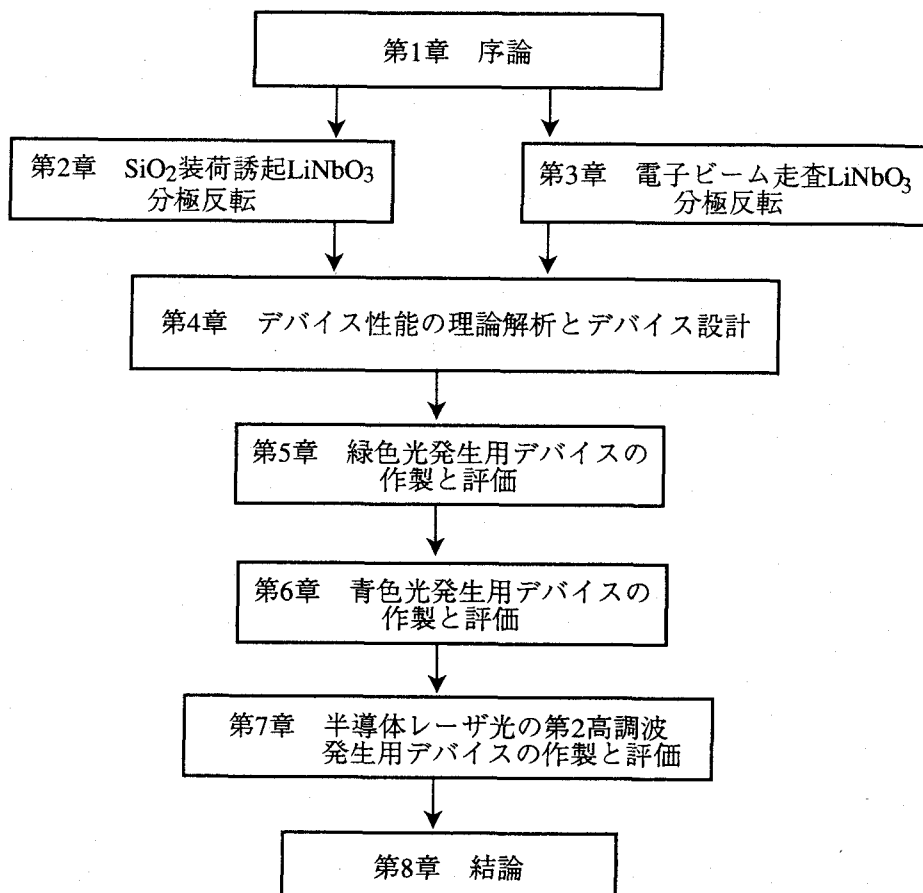


図1.6 本論文の構成を示すブロックダイアグラム

第2章 SiO₂装荷誘起LiNbO₃分極反転^{24),25)}

2.1 緒言

本章では、本研究において新たに見いだされた、SiO₂装荷誘起LiNbO₃分極反転法について述べる。まず、この分極反転法による分極反転グレーティングの作製について、その手順と得られる分極反転構造を明らかにする。次に、作製条件、微細周期グレーティング作製、分極反転の生じるメカニズムなどについての検討を行う。また、本研究において見いだされた、直流スパッタにより金を堆積することによるLiNbO₃の分極反転構造の検査法についても述べる。

2.2 分極反転グレーティングの作製

2.2.1 分極反転の方法

SiO₂装荷誘起LiNbO₃分極反転法の手順を図2.1に示す。厚さ1mmのZ板LiNbO₃単結晶の+Z面上にSiO₂を約0.1 μ m堆積し、レジストパターンニングとSiO₂エッチングでSiO₂グレーティングパターンを形成する。次に、酸素雰囲気中で、1000 $^{\circ}$ C、2時間の熱処理を行い、加熱終了後電気炉内で自然冷却する。以上の手順でSiO₂の下部でLiNbO₃の分極反転が生じ、分極反転グレーティングが得られる。結晶表面に残ったSiO₂はフッ酸緩衝溶液(BHF)で除去できる。なお、この方法では分極反転にともなう結晶の屈折率変化はないと考えられる。

2.2.2 分極反転構造の特徴

LiNbO₃の分極反転構造を直接観察することはできない。しかし、フッ酸・硝酸混合液(混合比1:2)にLiNbO₃を浸すと、+Z面はほとんどエッチングされないが、+Z面上で分極反転の生じた部分(-Z面)だけがエッチングされるので、反転構造を明らかとすることができる^{51),52)}。SiO₂装荷と熱処理により作製した周期7 μ mの分極反転グレーティングをエッチングした結果を図2.2に示す。エッチングは、常温で3~6時間程度行った。図2.2(a)は結晶表面でのエッチングパターンを上方向より観察したもので、図2.2(b)は結晶を切断、その端

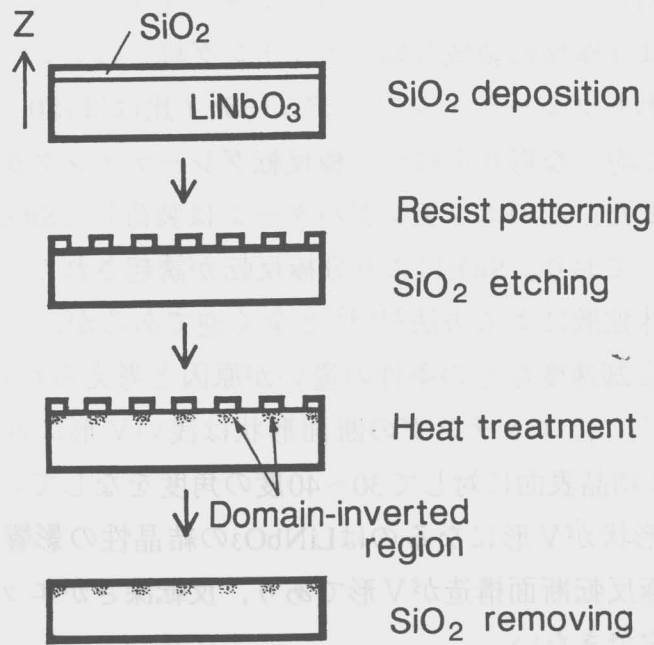


図2.1 SiO_2 装荷誘起 LiNbO_3 分極反転法

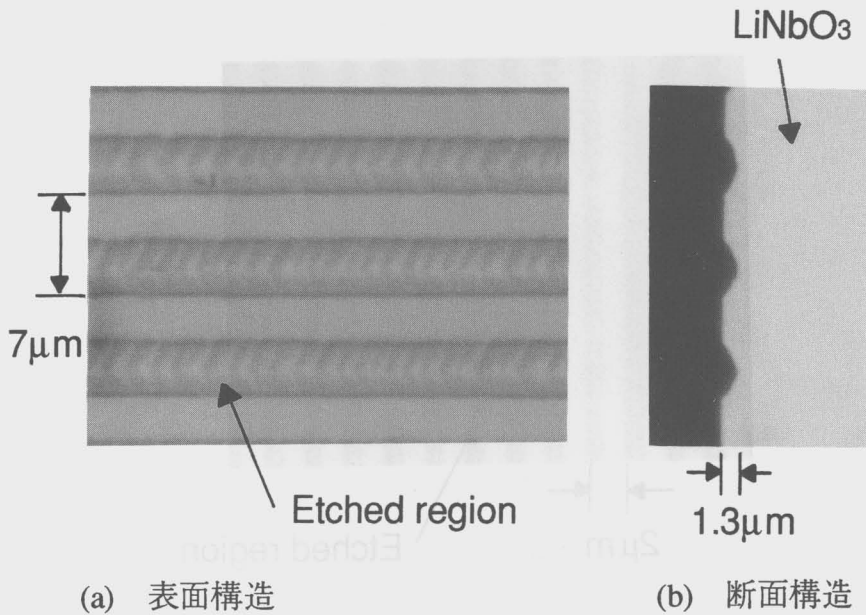


図2.2 周期 $7\mu\text{m}$ の分極反転グレーティング (エッチング結果)

面を研磨して明らかとなったエッチングの断面形状である。図2.2(a)より、結晶表面付近では分極反転領域の幅（エッチング幅）のグレーティング周期に対する比、すなわちグレーティングのデューティ比はほぼ0.5であり、しかも広い面積に渡って均一な形状を持つ分極反転グレーティングが作製できていることがわかる。また、このエッチングパターンは装荷した SiO_2 グレーティングパターンと一致しており、 SiO_2 により分極反転が誘起されたことがわかる。この結果は Li_2O の外拡散による方法^{23),43)}と全く逆であるが、これは熱処理の温度、時間、加熱、冷却速度などの条件の違いが原因と考えられる。また、図2.2(b)からわかるように、エッチングの断面形状は浅いV形に近く、その深さは約 $1.3\mu\text{m}$ 、斜辺は結晶表面に対して $30\sim 40$ 度の角度をなしている。しかし、エッチングの断面形状がV形になるのは LiNbO_3 の結晶性の影響とも考えられるので、実際に分極反転断面構造がV形であり、反転深さがエッチング深さと同じであるとは断定できない。

さらに微細な周期を持つ分極反転グレーティング作製を試みた結果、図2.3に示すような周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングも得ることができた。この時

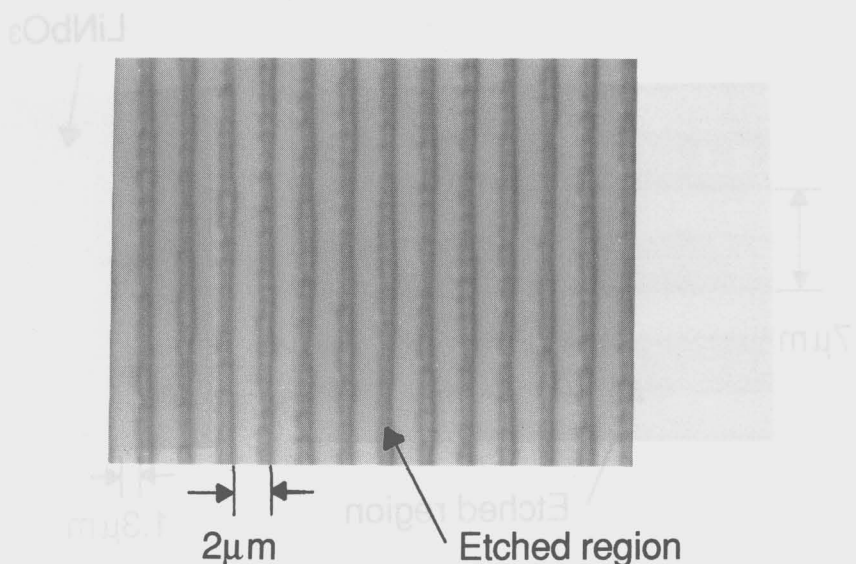


図2.3 周期 $2\mu\text{m}$ の分極反転グレーティング（エッチング結果）

のエッチングの断面形状もやはり浅いV形であり，斜辺の結晶表面に対する角度は30～40度であった。これより，エッチングの深さが表面における分極反転領域の幅にはほぼ比例していることがわかった。しかし，このような微細周期の分極反転グレーティング作製の再現性はあまり良くなかった。これについては2.4において詳しく述べる。

2.3 熱処理条件の検討

本方法を用いて，周期6～7 μm の分極反転グレーティング作製をさまざまな熱処理条件の下で試みた結果を表2.1に示す。これより，本方法による分極反転が，1000 $^{\circ}\text{C}$ ，2時間付近の広い熱処理条件の下で生じることがわかる。この熱処理条件下での分極反転グレーティング作製の再現性は極めて良かった。なお，1100 $^{\circ}\text{C}$ の熱処理では，装荷した SiO_2 が変形したりひび割れしたりする上， SiO_2 の装荷していない部分でも反転が生じた。

表2.1 SiO_2 装荷誘起分極反転法の熱処理条件依存性

- ：分極反転グレーティング作製可能
 ×：分極反転グレーティング作製不可能

temp. [$^{\circ}\text{C}$]	time [h]			
	1	1.5	2	4
950			×	
1000	×	○	○	○
1030	○	○	○	
1100			×	

2.4 微細周期グレーティング作製の試み

2.2.2で述べたように，本方法によれば周期2 μm の分極反転グレーティングが

作製可能である。しかし、周期が $3\mu\text{m}$ 以下であるような微細周期分極反転グレーティング作製においては、分極反転領域の幅が装荷した SiO_2 の幅よりも細くなる。また、時には反転が生じなくなり、作製の再現性が大きく低減する。これらの現象の改善のために、分極反転プロセスにおいて次のような工夫を試みた。1)装荷する SiO_2 グレーティングパターンのデューティ比を制御して、 SiO_2 の幅が太いグレーティングを用いる。2)熱処理後に試料を電気炉内で自然冷却するのではなく急冷する。3) $1\mu\text{m}$ 程度の厚い SiO_2 装荷層を用いる。4)図2.4に示すように、一旦、必要な周期(Λ)の2倍の周期(2Λ)を持つ分極反転グレーティングを作製した後、その半周期分(Λ)だけずらした位置に SiO_2 グレーティングを再度作製し、再び分極反転を試みる。1)の方法により幾分再現性の向上が見られたが、それは不十分なものであった。2),3)の方法を用いても得られた結果に大きな違いはなかった。4)の方法を用いた場合、1回目の反転操作で反転したところが2回目の反転操作で再反転して元に戻ってしまい、微細周期グレーティングを得ることはできなかった。

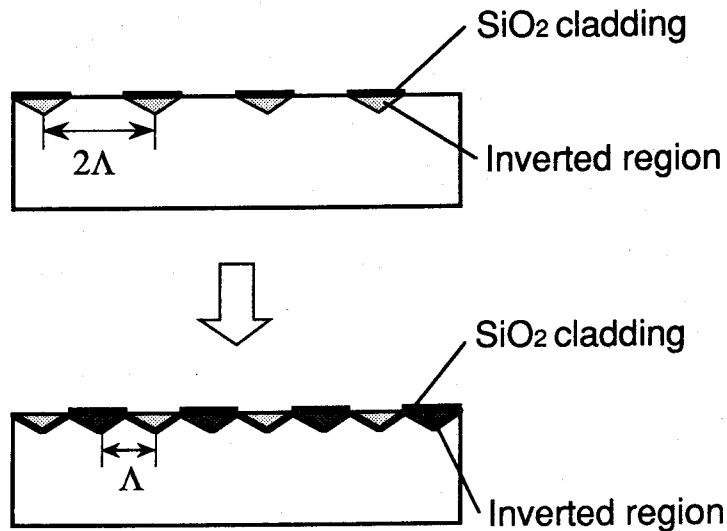
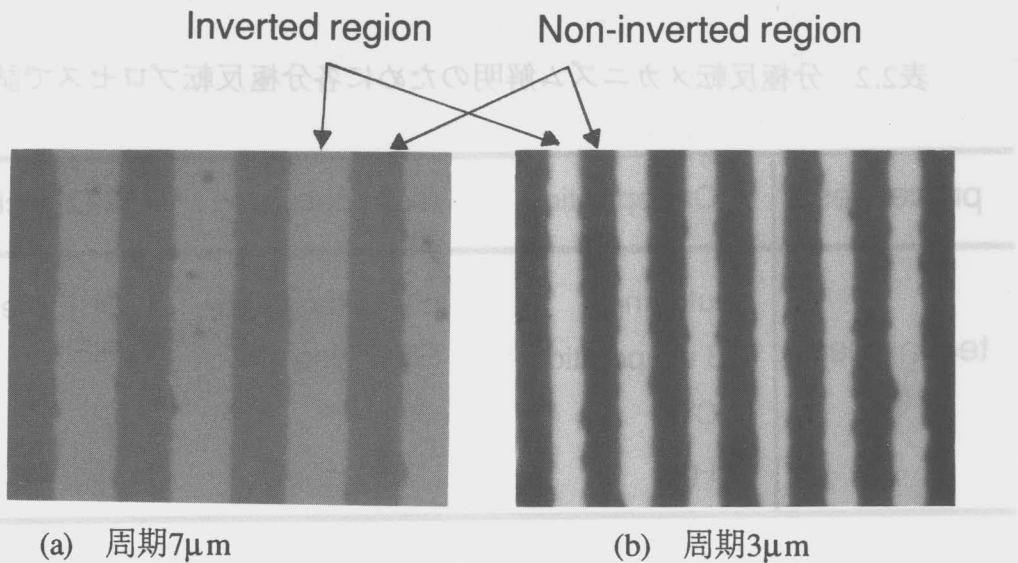


図2.4 微細周期グレーティング作製に試みた方法

2.5 直流スパッタによる分極反転構造の確認

LiNbO₃の分極反転構造を調べるためのフッ酸・硝酸混合液によるエッチングは破壊的検査法であり、有効な方法ではない。本研究において、LiNbO₃結晶上に直流スパッタにより金の薄膜を堆積するだけで分極反転構造を視覚化できることが見出された。周期7 μm と周期3 μm の分極反転グレーティングを作製した結晶上に、直流スパッタ装置により金を約60nm堆積した後、光学顕微鏡で観察した結果を図2.5に示す。明るく見える部分が分極の反転した領域であり、暗く見える部分が非反転の領域である。コントラスト良く反転・非反転を区別できる。堆積した金薄膜は、ヨウ素ヨウ化カリウム溶液により簡単に除去できるので、この方法を用いれば簡単にしかも非破壊で分極反転構造を知ることができる。真空蒸着により金を堆積した場合には、分極反転構造の確認はできなかった。このことより、この検査法のメカニズムを考察すると、次のような説明ができる。分極反転領域と非反転領域では自発分極の反転のために結晶表面電位が異なり、プラズマ通過中に帯電したスパッタ原子の堆積速度に差が生じる。そのため堆積する金の膜厚に差が生じて分極反転構造が視覚化できるのではないかと考えられる。



(a) 周期7 μm

(b) 周期3 μm

図2.5 金の直流スパッタによる分極反転構造の確認

2.6 分極反転メカニズムの検討

分極反転のメカニズムは明確ではないが、可能性として、作製プロセス中にプラズマにさらされたり、電子ビームを照射されたりすることや、あるいは、SiO₂クラッド中に不純物が混入していてそれがLiNbO₃結晶中に拡散したりすることが分極反転に影響を与えているとも考えられる。そこで、そのようなことの影響の有無を調べるために、SiO₂の堆積、レジストパターンニング、SiO₂エッチングの各プロセスに対して、表2.2に示すようないろいろな方法を試してみた。例えば、全く別の方法で堆積したSiO₂が同じ不純物を含んでいるとは考えにくいので、SiO₂の堆積法のみが異なるサンプルを用意して分極反転を試みれば、SiO₂中の不純物の分極反転への影響を知ることができる。しかし、表2.2に示したどの方法を用いた場合でも分極反転の結果に違いは見られなかった。これより、この分極反転は純粋にSiO₂の固有の性質により引き起こされていることがわかる。これ以上のメカニズムは明らかではないが、一つの可能性として、SiO₂とLiNbO₃の熱膨張率の違い⁵³⁾により、熱処理中あるいはその後にLiNbO₃結晶中に歪みが生じ、さらに圧電性による電界が関与して分極反転を誘起しているのではないかと考えられる。

表2.2 分極反転メカニズム解明のために各分極反転プロセスで試みた方法

processes	SiO ₂ deposition	resist patterning	SiO ₂ etching
techniques	sputtering	photolithography	BHF chemical etching
	EB evaporation	EB writing	RIE
	P-CVD		
	sol-gel		

2.7 結言

本研究において見いだされた、 SiO_2 装荷と熱処理による LiNbO_3 の分極反転法について、その手順、分極反転構造、及びその特徴について述べた。

この方法によれば、簡単に、広い熱処理条件の下で再現性良く、均一な表面構造を持つ分極反転グレーティングを作製できる。作製可能な最小周期は $2\mu\text{m}$ 以下であるが、周期 $3\mu\text{m}$ 以下では作製の再現性が低下した。反転のメカニズムは明確ではないが、 SiO_2 固有の性質に起因していることが明らかにされた。

この方法で得られる分極反転構造は、エッチングの結果を見る限り、従来用いられて来たTi内拡散やLi外拡散による方法で得られるものと類似の構造である。しかし、この方法で作製すれば屈折率変化をともしないという利点がある。

また、直流スパッタによる金の薄膜堆積により、分極反転構造を調べることができることを示した。

第3章 電子ビーム走査LiNbO₃分極反転²⁶⁾⁻²⁸⁾

3.1 緒言

前章で述べたSiO₂装荷誘起分極反転法も含めて、これまでに知られているLiNbO₃分極反転法では結晶表面の極薄い範囲内にしか分極反転領域を形成することができなかった。しかし、最近、電子ビームの走査により結晶表面から裏面まで達するような分極反転領域が形成できることが示され⁴⁶⁾⁻⁴⁸⁾バルクSHG実験は既に報告されている⁴⁷⁾。このような分極反転構造を導波路形SHGデバイスに用いれば、分極反転グレーティングと導波光のモードプロファイルの重なりが大きくなるので、高効率なSHGが期待できる。

本章では、導波路形SHGデバイスへの適用を念頭において、この電子ビーム走査LiNbO₃分極反転法の特徴を調べた結果を述べる。まず、この方法で得られる分極反転グレーティング構造について詳細に述べた後、グレーティング形状の電子ビーム走査条件に対する依存性を明らかにする。また、高効率導波路SHGデバイスに必要な長い相互作用長を得るための工夫についても述べる。さらに、得られた結果を総合して、分極反転のメカニズムについて検討を行う。

3.2 分極反転グレーティングの作製

3.2.1 分極反転の方法

電子ビーム走査によるLiNbO₃分極反転法を図3.1に示す。厚さ0.5mm、両面研磨のZ板LiNbO₃結晶の+Z面上に、厚さ約0.1 μ mの金薄膜を堆積し接地した。そして、常温、バイアス電界無しの場合の下、-Z面上で電子ビームを走査してグレーティングパターンを描画すると、電子ビーム照射部において分極反転が生じて分極反転グレーティングが得られた。電子ビームの照射条件は、加速電圧20kV、ビーム電流0.3nAであった。また、この電子ビームの接地したサンプル表面でのスポット径は約0.3 μ mであった。

電子ビーム走査モードの違いによる分極反転グレーティング構造への影響を

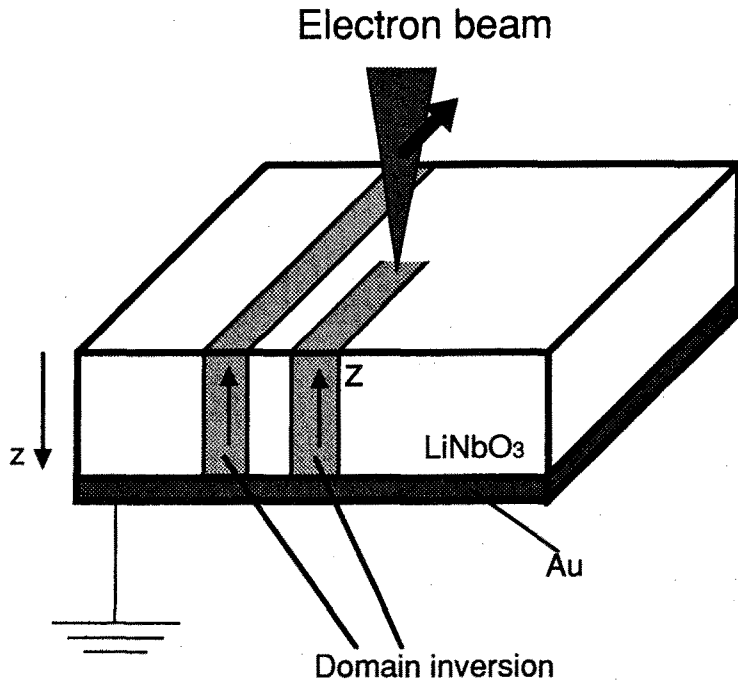


図3.1 電子ビーム走査LiNbO₃分極反転法

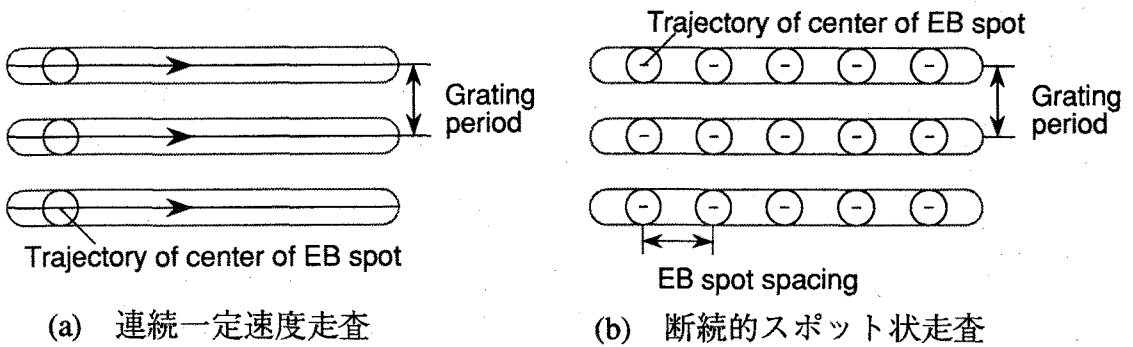


図3.2 電子ビーム走査モード

知るために、図3.2に示すような2つの電子ビーム走査モードを用いて反転を試みた。図3.2(a)は電子ビームを連続的に一定速度で走査するモードであり、図

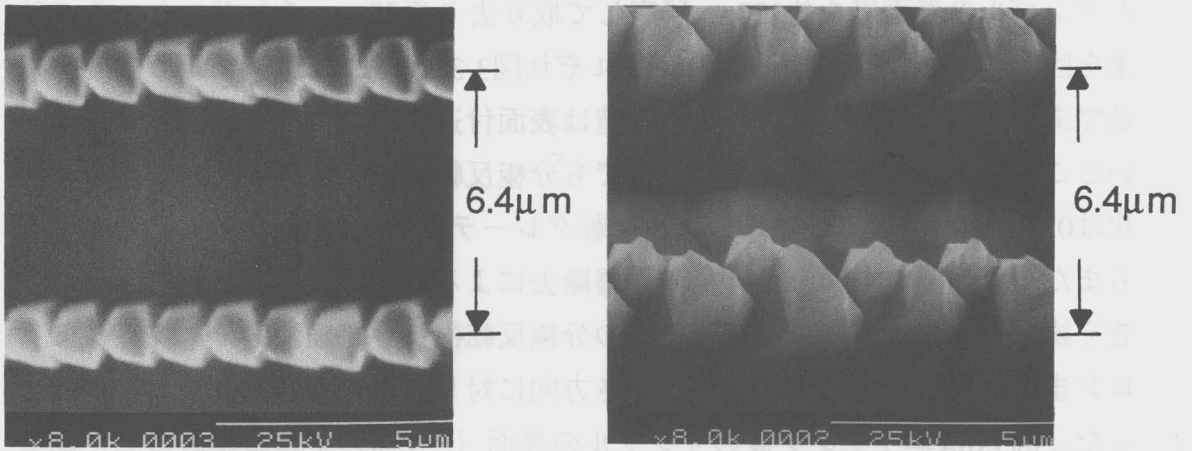
3.2(b)は電子ビームのスポット位置をホッピングしながら断続的に照射する走査モードである。断続的走査の場合のビームスポット中心間隔は $0.3\mu\text{m}$ から $5\mu\text{m}$ の範囲内の値を用いた。

3.2.2 分極反転構造の特徴

電子ビーム走査で作製した分極反転構造を調べるために、2.5で述べた直流スパッタによる金薄膜堆積による方法を用いてみたが、分極反転パターンではなく、電子ビーム照射パターンを表すと思われるパターンが現れ、分極反転構造を確認することはできなかった。これは、結晶表面付近に電子ビーム照射により電荷が蓄積されて残っており、結晶表面電位に影響を与えたためと考えられる。

電子ビーム走査により作製した分極反転グレーティングの-Z面付近での構造を、フッ酸・硝酸混合液によりエッチングし、上方よりSEM観察して調べた結果を図3.3に示す。図3.3(a)は連続的電子ビーム走査により作製した分極反転グレーティングの場合の、図3.3(b)はスポット中心間隔 $0.35\mu\text{m}$ の断続的電子ビーム走査により作製した分極反転グレーティングの場合のエッチング結果である。グレーティングの周期はともに $6.4\mu\text{m}$ であり、グレーティングラインの単位長さ当たりの電子ビームによる電荷の照射量、すなわち線電荷密度はともに 30nC/cm であった。いずれの場合でも分極反転グレーティングが得られているが、たとえ連続的に電子ビーム走査した場合でも、分極反転は連続的につながって起こるのでなく粒塊状に寸断されて起こっていることがわかる。分極反転の起こっている粒塊状構造の一つのセグメントとその隣のセグメントとの間隔はほぼ $1\mu\text{m}$ である。連続的電子ビーム走査をさまざまな走査速度において試みたが、このセグメント間隔はほぼ同じであった。また、断続的電子ビーム走査の場合は、ビームスポット中心間隔が $1\mu\text{m}$ 以上の場合にはセグメント間隔はそれに一致した。一方、スポット中心間隔が $1\mu\text{m}$ 以下の場合にはセグメント間隔はほぼ $1\mu\text{m}$ でスポット中心間隔に依存しなかった。図3.3(b)に示したサンプルを斜め方向より観察した結果を図3.4に示す。これより、結晶の-Z面付近では、

分極反転構造は針先のように尖っていることがわかる。電子ビーム走査により分極反転を誘起した後、極僅かのエッチングと顕微鏡観察とを繰り返して行う



(a) 連続的電子ビーム走査

(b) 断続的電子ビーム走査

図3.3 結晶表面 (-Z面) 付近での周期 $6.4\mu\text{m}$ 分極反転グレーティング
(エッチング結果)

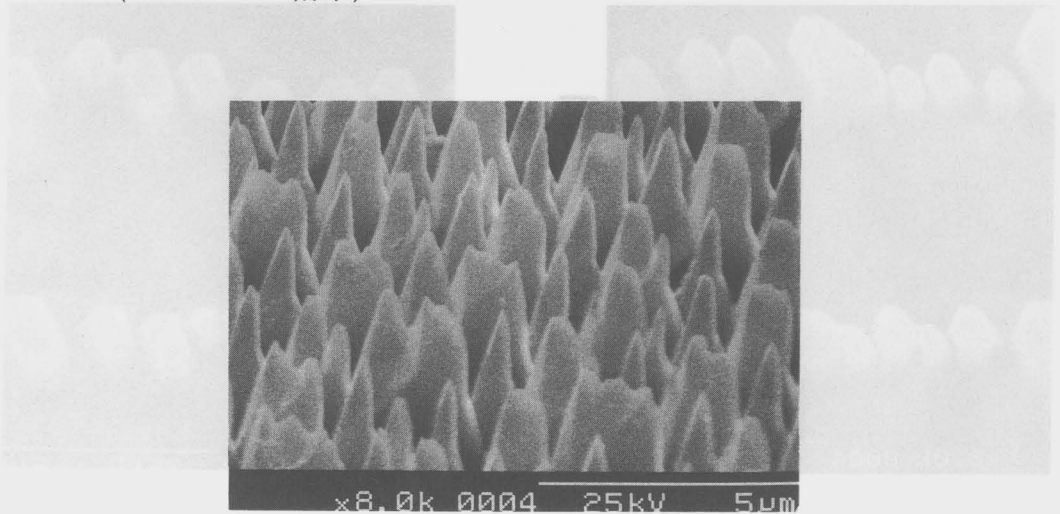
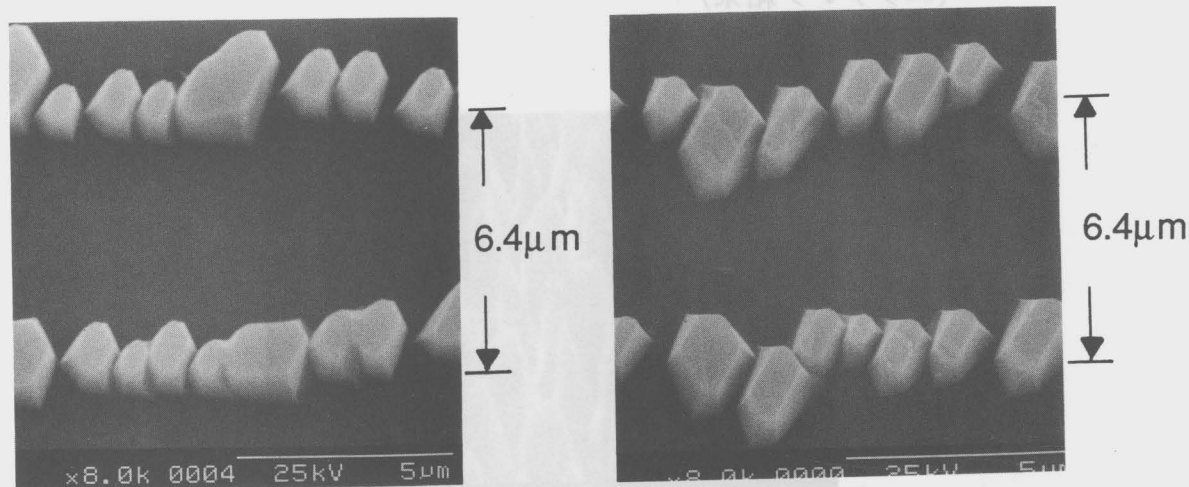


図3.4 分極反転グレーティングの斜方観察結果 (エッチング結果)

ことでこの構造をより詳しく調べると、分極反転は結晶の表面から始まっているのではなく結晶表面に対して約 $0.2\mu\text{m}$ の深さの所から始まっており、表面から数ミクロンの深さの範囲では分極反転の幅が深さに応じて徐々に太くなって行くことがわかった。結晶内部での分極反転構造を知るために、図3.3に示したサンプルの表面層を約 $100\mu\text{m}$ 研磨して取り去り再びエッチングした。その結果を図3.5に示す。図3.5(a), (b)はそれぞれ図3.3(a), (b)のサンプルでの内部構造である。結晶内部での分極反転構造は表面付近に比べてその幅が太くなっていることがわかる。但し、その場合でも分極反転グレーティングのデューティ比は0.2程度しかなく、理想的分極反転グレーティングのデューティ比0.5よりもまだ小さい。このような結晶表面層除去による結晶内部での分極反転構造検査を繰り返すことにより、結晶内部の分極反転構造が、表面近くの深さ数ミクロンまでの領域を除けば、結晶の厚さ方向に対してほぼ一様であることがわかった。図3.6はエッチング後のサンプルの裏面(+Z面)を顕微鏡観察した結果である。グレーティング構造が現れていることより、分極反転領域が結晶裏面まで達していることが確認できた。



(a) 連続的電子ビーム走査

(b) 断続的電子ビーム走査

図3.5 結晶内部での周期 $6.4\mu\text{m}$ 分極反転グレーティング (エッチング結果)

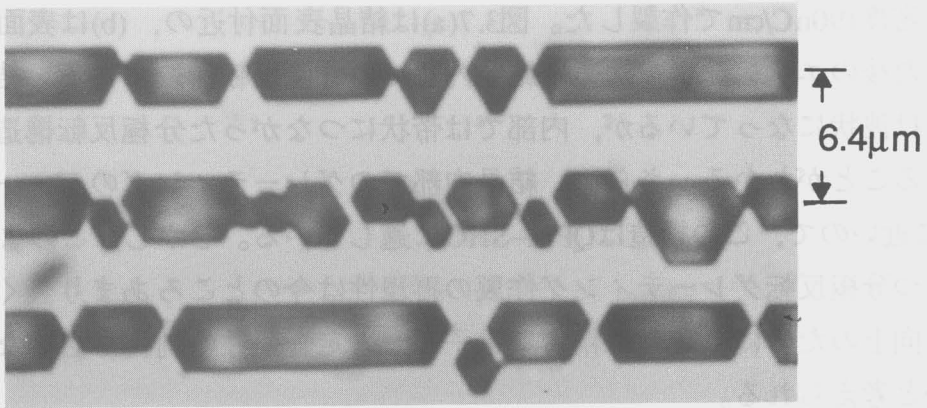
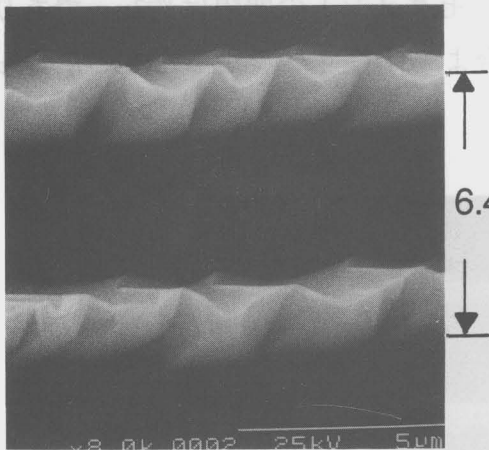
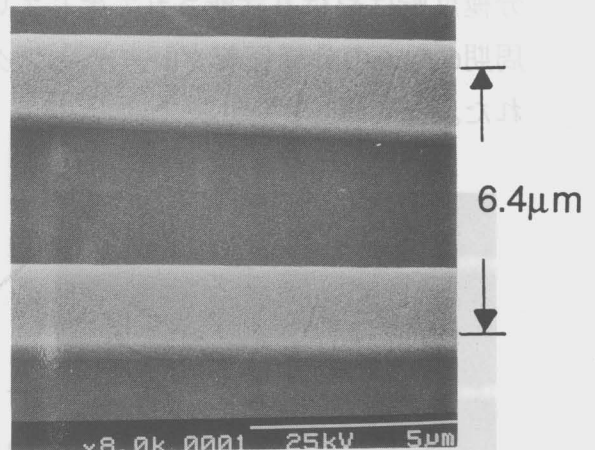


図3.6 結晶裏面 (+Z面) での分極反転構造 (エッチング結果)



(a) 結晶表面 (-Z面)



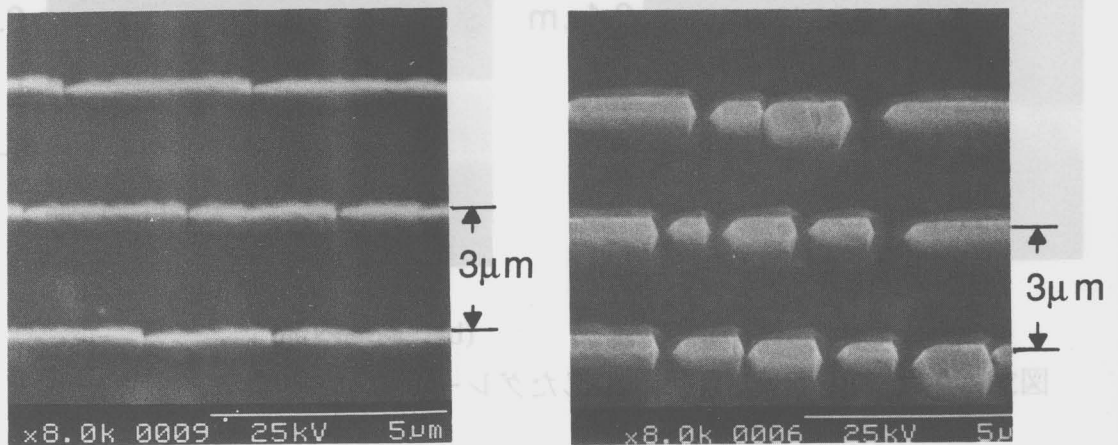
(b) 結晶内部

図3.7 つながって分極反転が生じたグレーティング (エッチング結果)

電子ビーム走査分極反転では、図3.3に示したように、分極反転がつながって起こらず寸断されて起こる傾向があることがわかった。しかし、図3.7に示すような、つながった分極反転構造を得ることもできた。この分極反転グレー

ティングは、電子ビームのスポット中心間隔 $0.35\mu\text{m}$ の断続的電子ビーム走査、線電荷密度 190nC/cm で作製した。図3.7(a)は結晶表面付近の、(b)は表面層を取り去った後のエッチングで調べた結晶内部での分極反転構造である。結晶表面付近では波状になっているが、内部では帯状につながった分極反転構造が得られていることがわかる。さらに、結晶内部でのグレーティングのデューティ比は 0.5 に近いので、この構造はQPM-SHGに適している。しかし、このような形状をもつ分極反転グレーティング作製の再現性は今のところあまり良くない。再現性向上のためにはさらに精密な電子ビーム走査条件の制御が必要なのではないかと考えられる。

電子ビーム走査分極反転により作製した周期 $3\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングのエッチング結果を図3.8に示す。このグレーティングは、電子ビームのスポット中心間隔 $0.6\mu\text{m}$ の断続的電子ビーム走査、線電荷密度 12nC/cm で作製した。分極反転はやはり寸断されて生じているが、セグメントの間隔は約 $3\mu\text{m}$ であり周期 $6.4\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングの場合よりは長くつながったものが得られた。



(a) 結晶表面 (-Z面)

(b) 結晶内部

図3.8 周期 $3\mu\text{m}$ 分極反転グレーティングパターン (エッチング結果)

3.3 電子ビーム走査条件依存性

電子ビーム走査によるLiNbO₃分極反転の電子ビーム走査条件に対する依存性を調べるため、周期6.4 μm の分極反転グレーティング作製を以下に述べるような様々な条件の下で試みた。①電子ビーム走査方向の結晶方位に対する角度を変えて分極反転グレーティング作製を試みた。②様々な電子ビーム走査速度を試みた。③電子ビームの加速電圧として20kVのほかに40kVも試みた。④電子ビーム電流として0.3nAのほかに1nAも試みた。⑤断続的電子ビーム走査におけるスポット中心間隔を0.3 μm から1 μm までの範囲でいろいろ試みた。このような検討の結果、分極反転グレーティングを得るためには、グレーティングライン単位長さ当たりの電子ビームによる照射電荷量、すなわち線電荷密度が12~160nC/cmの範囲内であることが必要であることがわかった。この線電荷密度は連続的電子ビーム走査の場合は電子ビーム電流と走査速度で決まり、断続的走査の場合はビーム電流、走査速度と、スポット中心間隔により決まる。図3.9に線電荷密度が不足のとき、適正なとき、過剰なときの分極反転グレー

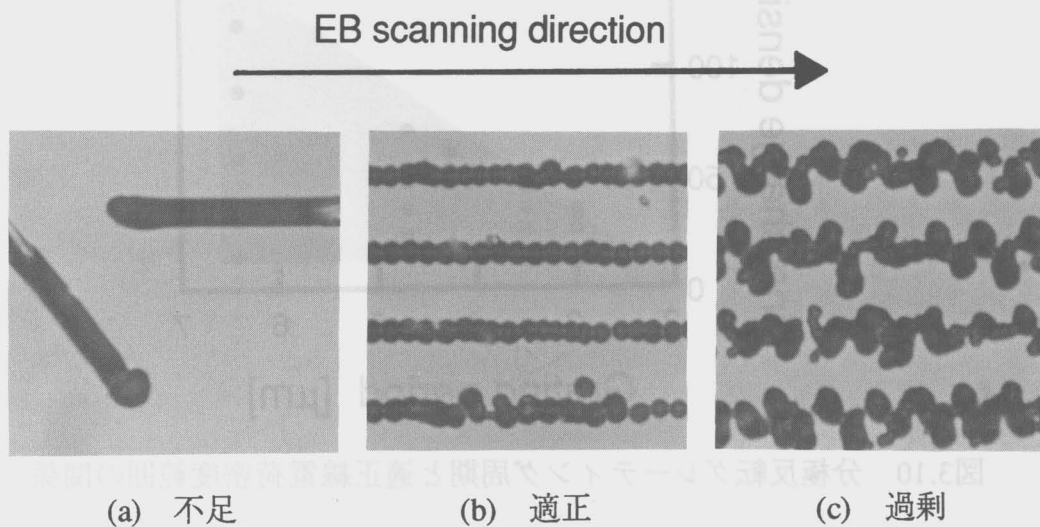


図3.9 線電荷密度と分極反転パターンとの関係

ティング作製結果を示す。これより、不足のときには分極反転している部分が少なくしかも電子ビーム走査方向に沿った反転が生じないことが、また、過剰なときにはグレーティングラインが崩れてくることがわかる。異なる電子ビーム走査モードに対しても適正線電荷密度範囲はほぼ同じであった。

さまざまな周期 (2.5, 3.0, 3.3, 4.7, 6.4 μm) の分極反転グレーティング作製を試みて、それぞれの周期のグレーティング作製において適正線電荷密度範囲を調べた結果を図3.10に示す。図中の●で示したのが分極反転グレーティングを得ることができた条件である。これより、図の斜線で示した部分において分極反転グレーティングを得ることができることがわかった。また、電子ビーム走査により作製可能な分極反転グレーティングの最小周期が2.5 μm 以下であることがわかった。

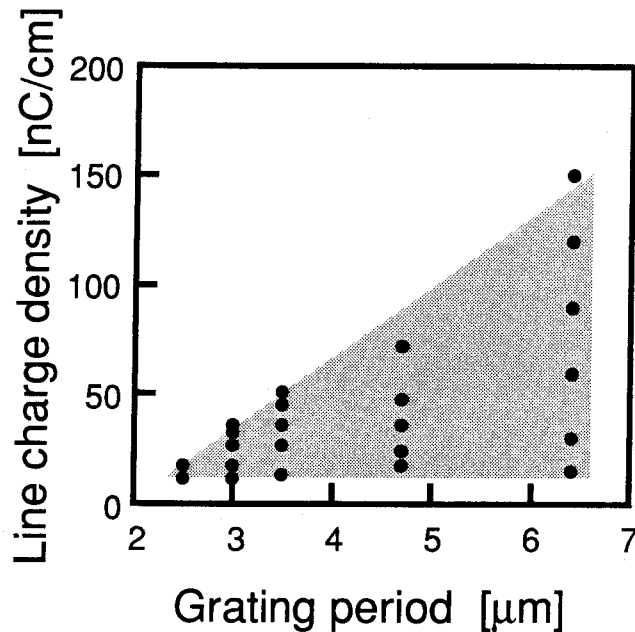


図3.10 分極反転グレーティング周期と適正線電荷密度範囲の関係

3.4 長相互作用長の実現

高効率SHGには長い相互作用長の達成が不可欠であるので、導波路形QPM-SHGデバイス作製には導波光との相互作用長の長いグレーティングを作製することが必要となる。しかし、電子ビーム走査により一辺の長さが3.3mmの正方形の領域に周期6.4 μm の分極反転グレーティングの作製を試みた結果、図3.11に模式的に示すように、電子ビーム走査した領域の前半部分でしか分極反転グレーティングが得られず、後半部分では分極反転グレーティング構造が歪んだり分極反転が生じていなかったりした。このような分極反転グレーティングの面積制限は、電子ビーム既照射領域内に蓄積されて残っている電荷がつくる電界が電子ビーム照射に影響を与えるためと考えられる。これについては、3.6において詳しく検討する。このようなグレーティングの面積制限を回避して長い相互作用長を得るために、図3.12に示すような方法を用いた。図3.12(a)はグレーティングを2つの部分に分割して作製する分割形を示している。中央に電子ビームを照射しない電界緩衝領域を作ることで、前半部分に蓄積された電荷による電界が後半部分での電子ビーム照射に及ぼす影響が軽減されて分極反転を妨げなくなるので結果として長い相互作用長を得ることができる。図3.12(b)はグレーティングの横幅を小さくすることで相互作用長を長くする短冊

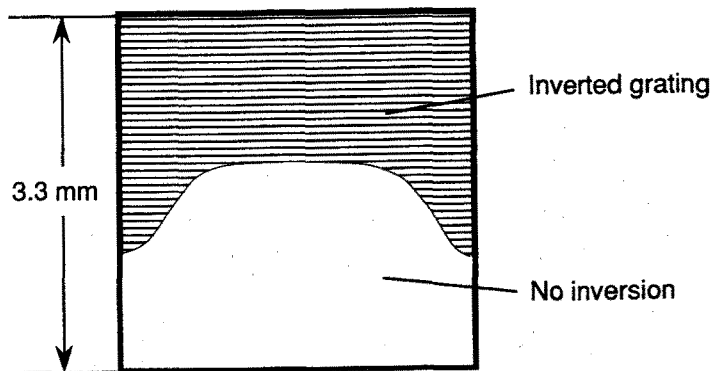


図3.11 分極反転グレーティングの面積制限

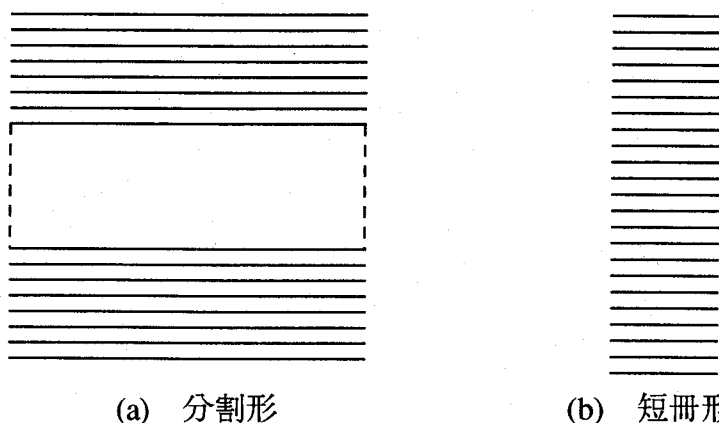


図3.12 長相互作用長分極反転グレーティング実現の工夫

形を示している。2つもしくは3つに分割した分割形や横幅を1mm程度にした短冊形を用いることで周期 $6.4\mu\text{m}$ 、相互作用長 3.3mm の分極反転グレーティングを作製できた。さらに長い相互作用長実現を検討したが、分割形では電子ビーム走査装置の走査面積の限界に制限されて 3.3mm 以上は得られなかった。一方、短冊形では横幅を $100\mu\text{m}$ 程度にすることで 5mm 程度の相互作用長を達成できた。

3.5 裏面非研磨結晶での分極反転

光学研磨が表面(-Z面)のみであるような LiNbO_3 結晶基板を用いて分極反転を試みた。周期 $6\mu\text{m}$ 程度の分極反転グレーティングは両面研磨の結晶を用いた場合と同じ条件で作製できたが、周期 $3\mu\text{m}$ 程度のグレーティングはパターンが崩れてしまった。3.6に述べるように、電子ビーム走査による分極反転と照射された電子が結晶内部につくる電界は密接な関係があると考えられる。一方、裏面(+Z面)非研磨の結晶では裏面の凹凸により結晶内部での電界分布が乱される。このような電界の乱れが分極反転パターンに与える影響は、グレーティング周期が細かいほど大きくなるので、周期 $6\mu\text{m}$ は作製できても周期 $3\mu\text{m}$ は作製できなかったのだと考えられる。

3.6 分極反転メカニズムの検討

メカニズム

電子ビーム走査による分極反転メカニズムは明確にされていないが、前述のようなさまざまな検討を行った結果、一つの可能性として次のようなメカニズムを考えることができる。電子ビームがLiNbO₃結晶の-Z面に照射されたときの様子を模式的に示したのが図3.13である。電子ビームによる照射電子の一部はLiNbO₃結晶の内部へと数ミクロン程度侵入し、結晶表面近くに帯電領域をつくる。結晶表面近くでこのような小さな帯電領域があるのに対して結晶裏面は全体が金電極を通じて接地されているため、LiNbO₃結晶内には図のような電界が発生する。この電界は自発分極の方向と反対方向の成分を持つので、この電界が十分に大きければ分極反転が生じるものと考えられる。

電子ビームの照射により帯電領域内では多くの正孔・電子対が生成する。この正孔・電子対はLiNbO₃結晶中で拡散するが、絶縁体であるLiNbO₃中ではこの拡散範囲は数ミクロン以下と考えられるので、生成した正孔・電子対のほと

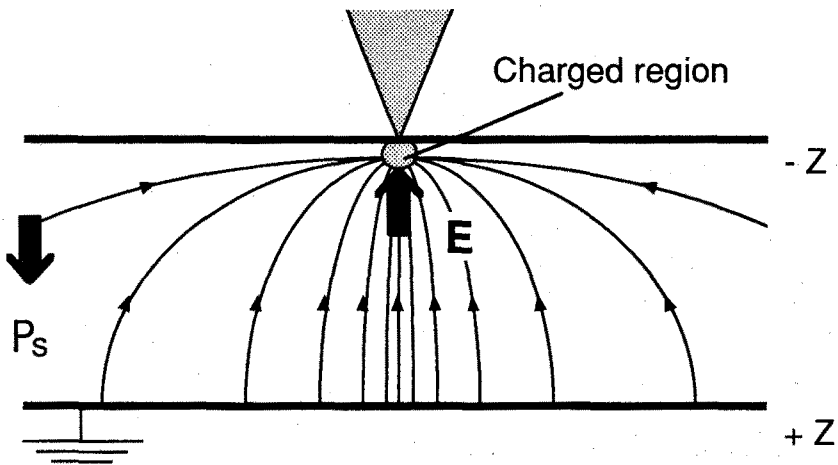


図3.13 電子ビーム走査分極反転のメカニズム

んどが帯電領域内に存在すると考えられる。このような可動荷電粒子が多数存在する帯電領域内での電界強度は小さくなる。それに対して、帯電領域の真下部分において電界強度は最大となる。この電界の強度が LiNbO_3 の抗電界よりも大きければこの部分で分極反転の種が生じる。一旦分極反転の種が生じれば、電界強度が最大となるのはその反転部分の真下部分になる。このような電界強度が最大となる部分の移動は分極反転領域の下方向への成長を促すので、分極反転領域は結晶表面に対し垂直に成長して結晶裏面にまで達する。このように考えれば3.2で明らかにしたような分極反転断面構造が得られる理由を矛盾なく説明できる。電子ビーム照射により結晶内の酸素原子が励起されて酸素分子イオンをつくり結晶構造が変化すること⁴⁴⁾や、電子ビームの照射により結晶表面近くの温度が上昇することも考えられ、分極反転の種が発生する際にこのような現象が影響している可能性もある。

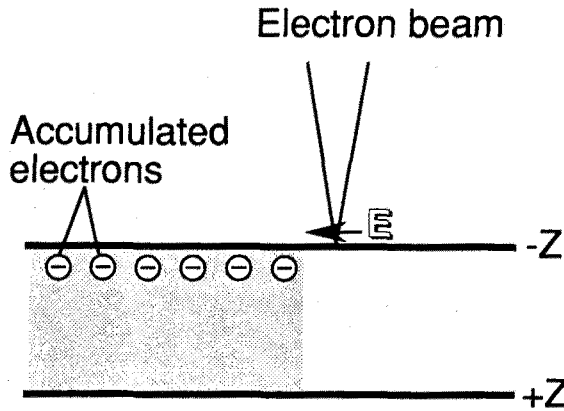
自発分極反転による電界の中和

図3.10から、周期 $2\mu\text{m}$ 程度の分極反転グレーティング作製には 10nC/cm 程度の線電荷密度が必要であることがわかる。ここで、分極反転領域の幅がその周期の半分の $1\mu\text{m}$ であると仮定すれば照射面電荷密度は $100\mu\text{C/cm}^2$ となる。 LiNbO_3 結晶の自発分極の大きさ ($70\mu\text{C/cm}^2$)⁵⁴⁾はこの照射面電荷密度の大きさに近いので、自発分極反転は電子ビーム照射により表面付近に蓄えられた電荷の大部分を中和する。結晶表面を電子ビーム走査する時、2次電子像を構成する輝点の明滅が観測された。これは、結晶表面での電位の揺らぎを意味しており、自発分極反転による中和効果が、間欠的に生じていることを表している。電子ビーム照射により結晶表面付近に蓄えられた電荷が分極反転を引き起こしているならば、この間欠的な中和効果が、分極反転が寸断されて生じることと関係していると考えられる。

グレーティング作製可能面積制限の原因

自発分極反転による照射電荷の中和効果が完全ではない場合、電子ビームを照射した部分には図3.14に示すように結晶表面付近に電荷が残留し蓄積されて

行く。このような電子ビーム既照射領域での蓄積電荷は、結晶表面で電子ビームの軸に対して横方向の電界を誘起し照射する電子ビームの集束やスポット位置に影響を与える。そのため、大面積にわたり分極反転を誘起する状態を維持するのは困難である。3.4で述べた分極反転グレーティングの面積制限はこの効果によるものと考えられる。



3.14 電子ビーム走査による分極反転グレーティングの 作製可能面積制限のメカニズム

3.7 結言

本章では、高効率な導波路形QPM-SHGデバイスを実現できると考えられる電子ビーム走査分極反転グレーティング作製について詳細な検討を行った。この分極反転法の導波路形SHGデバイスへの適用はこれまで報告例がなく、本研究において初めてなされたものである。この方法による分極反転領域は結晶裏面まで達しており高効率デバイス作製に有利である一方、分極反転が寸断されて生じること、結晶表面付近での分極反転構造が針先状であること、グレーティングのデューティ比が小さいこと、グレーティング面積に制限があると言った問題点も明らかになった。また、分極反転グレーティング作製の電子ビーム

照射条件依存性を調べ、分極反転グレーティングを得るためには、線電荷密度に適正範囲が存在することを見出し、その適正範囲のグレーティング周期依存性を明らかにした。

分極反転の生じるメカニズムは明らかではないが、電子ビーム照射により結晶表面近くに侵入した電子が結晶内部に作る電界が反転を引き起こしているという一つの考え方を示した。

4.1 緒言

本章では，導波路形QPM-SHGデバイス性能を理論的に解析するとともに，その解析結果を用いて，デバイスの設計を行う。既に導波路形QPM-SHGデバイスのSHG変換効率を与える一般式は報告されている⁴¹⁾。本研究では，導波光の電界モードプロファイルの導出と，分極反転グレーティング構造のフーリエ展開を用いた数式による表現の確立を行った後，これらをその一般式に適用して解析を行い，SHG変換効率の導波路サイズに対する依存性，分極反転構造依存性を明らかにする。また，導波路表面への高屈折率クラッド層装荷の影響を調べ，分極反転領域の深さが導波路に比べて浅いデバイスでの，変換効率が大きく改善できることを見出した。

分極反転グレーティング周期に多少の誤差があってもこれを補償してほぼ完全な位相整合の達成できるデバイス構成として，扇形構造を持つ分極反転グレーティングと，チャンネル光導波路アレーを組み合わせた構成を検討し，そのデバイスの設計手法の確立を行った。

4.2 SHG変換効率の理論式

一般理論式

図4.1に示すような，均一周期分極反転グレーティングをもつチャンネル導波路内でのQPM-SHGは次のモード結合方程式で記述できる。

$$\begin{aligned} \frac{d}{dx} A^{\omega}(x) &= -j\kappa B^{2\omega}(x) A^{\omega}(x) \exp(-j2\Delta x) \\ \frac{d}{dx} B^{2\omega}(x) &= -j\kappa [A^{\omega}(x)]^2 \exp(+j2\Delta x) \end{aligned} \quad (4.1)$$

ここで， $A^{\omega}(x), B^{2\omega}(x)$ はポンプ光とSH光の電界振幅， κ はSHG結合係数， Δ は

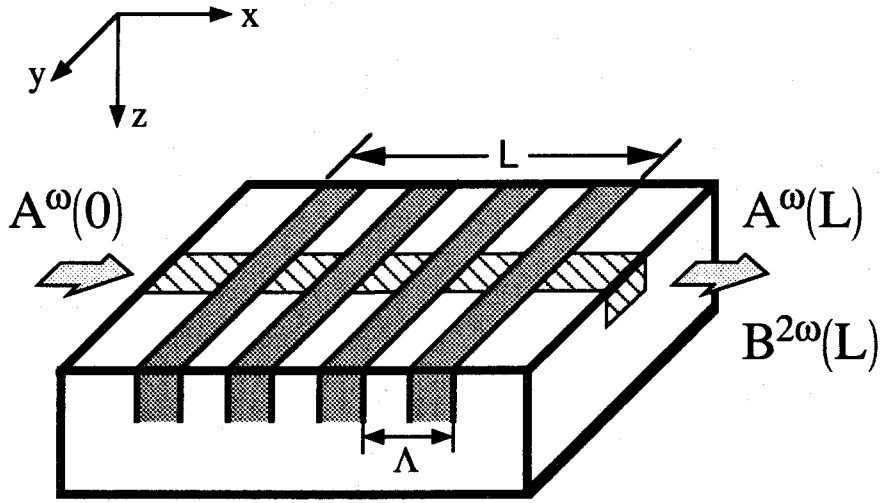


図4.1 均一周期分極反転グレーティングを持つ
チャンネル導波路形SHGデバイス

位相不整合量である。 κ と Δ は次式で表される。また、導波光の伝搬方向をx、導波路深さ方向をzとする座標系を用いた。

$$\kappa^2 = \frac{(2\omega)^2}{2(N^\omega)^2 N^{2\omega}} \left(\frac{\mu}{\epsilon_0}\right)^{3/2} \cdot \frac{\left(\iint [\mathbf{E}^{2\omega}]^* d_1 [\mathbf{E}^\omega]^2 dydz\right)^2}{\iint |\mathbf{E}^{2\omega}|^2 dydz \left(\iint |\mathbf{E}^\omega|^2 dydz\right)^2} \quad (4.2)$$

$$2\Delta = \beta^{2\omega} - (2\beta^\omega + 2\pi/\Lambda) \quad (4.3)$$

ここで、 ω はポンプ光の周波数、 N は導波モードの実効屈折率、 β は伝搬定数、 \mathbf{E} は導波光電界モードプロファイルで、添え字 ω 、 2ω はそれぞれポンプ光とSH

光を表す。また、 d_1 は周期的に変化するSHG係数(d)の分布をフーリエ展開したときの基本周期成分である。 E^ω , $E^{2\omega}$, d_1 は (y,z) の関数である。 N , β , E は導波路の屈折率分布によって決まる。また、 d_1 は分極反転グレーティング構造によって決まり、周期 Λ , デューティ比 $a(y,z)$ の分極反転グレーティングに対しては、式(4.4)のように表せる。

$$d_1(y,z) = \frac{2d}{\pi} \sin(a(y,z)\pi) \quad (4.4)$$

式(4.1)に示したモード結合方程式の厳密解は、ヤコビの楕円関数 sn を用いて次のように表せる。

$$\eta = \frac{|B(L)|^2}{|A(0)|^2} = \gamma \text{sn}^2 \left[\frac{\kappa\sqrt{P_0}L}{\sqrt{\gamma}} ; \gamma \right] \quad (4.5)$$

$$\gamma = \left[\sqrt{1 + \left(\frac{|\Delta|}{2\kappa\sqrt{P_0}} \right)^2} + \frac{|\Delta|}{2\kappa\sqrt{P_0}} \right]^{-2} \quad (4.6)$$

ここで、 $P_0=|A(0)|^2$ は、入射ポンプ光パワー、 L は相互作用長である。特に、SHG変換効率 η があまり小さくなくポンプ光パワーの減衰が小さいときには、式(4.5)は式(4.7)のように簡単化できる。

$$\eta = \kappa^2 P_0 L^2 (\sin \Delta L / \Delta L)^2 \quad (4.7)$$

式(4.7)からわかるように、SHG変換効率を基本波パワーで割った値 η/P_0 は各デバイスにおいて固有の値となるので、これを規格化SHG変換効率と呼び、デバイス性能の目安として一般的に用いられている。

本章では、SHG変換効率の計算を式(4.2), (4.3), (4.7)を用いて行う。なお、計算においては位相整合が達成されている、すなわち $\Delta=0$ であるとした。ま

た、LiNbO₃のSHGテンソル中で最大の $d_{33}(=4.2 \times 10^{-22} \text{F/V})^{55}$ を用いることのできる、Z板基板上的幅 W 、深さ T のステップ形屈折率分布を持ったチャンネル導波路に基本次数のTM-likeモードを励振した場合について計算した。

導波光電界モードプロファイルの導出

式(4.2)を用いてSHG結合係数を求めるためには、導波光の電界モードプロファイル \mathbf{E}^ω と $\mathbf{E}^{2\omega}$ が必要となる。しかし、チャンネル光導波路内での電界モードプロファイルを正確に求めることは容易ではない。ここでは、マーカッティリの方法⁵⁶⁾を用いて電界モードプロファイルを求めた。この方法では、TM-like基本モードの z 方向成分(導波路深さ方向成分) E_z を、導波方向に対して垂直な断面を図4.2のように表したときのI~Vの各領域内においては式(4.8)のように表せると仮定し、それ以外の領域での電界振幅は小さいとして無視する。このようにして求めた、式(4.8)の表す電界の z 成分のモードプロファイルの例を図4.3に示す。このプロファイルは、導波路幅 $W=3.6\mu\text{m}$ 、深さ $T=2.7\mu\text{m}$ として計算したもので、 \mathbf{E}^ω は波長 $1.064\mu\text{m}$ のときの、 $\mathbf{E}^{2\omega}$ は波長 $0.532\mu\text{m}$ のときの結果である。なお、各波長に対する導波路の屈折率 n_f と基板の屈折率 n_s はLiNbO₃のプロトン交換導波路⁵⁷⁾⁻⁶⁰⁾での屈折率を考慮して、表4.1のように仮定した。

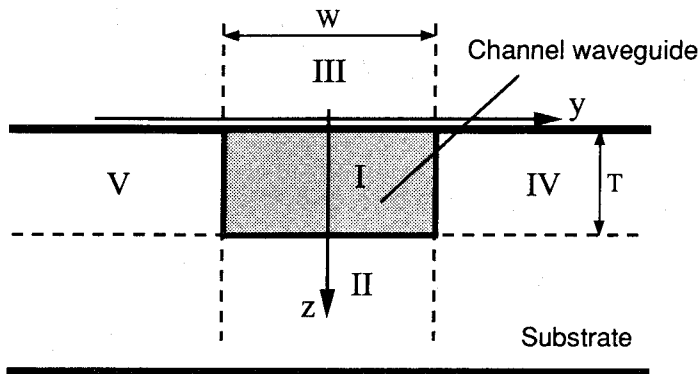


図4.2 ステップ形屈折率分布チャンネル導波路のモデル

$$\begin{aligned}
E_{II}(y,z) &= \left(1 - \frac{k_z^2}{k_0^2 n_f^2}\right) \cos(k_z z + \phi_1) \cos(k_y y + \phi_2) \\
E_{II}(y,z) &= \left(1 + \frac{\gamma_{z2}^2}{k_0^2 n_s^2}\right) \cos(k_z T - \phi_1) \cos(k_y y + \phi_2) \exp\{\gamma_{z2}(z+T)\} \\
E_{III}(y,z) &= \left(1 + \frac{\gamma_{z3}^2}{k_0^2 n_c^2}\right) \cos\phi_1 \cos(k_y y + \phi_2) \exp(-\gamma_{z3} z) \quad (4.8) \\
E_{IV}(y,z) &= \left(1 - \frac{k_z^2}{k_0^2 n_s^2}\right) \cos\left(\frac{k_y W}{2} + \phi_2\right) \cos(k_z z + \phi_1) \exp\left\{-\gamma_{y4}\left(y - \frac{W}{2}\right)\right\} \\
E_V(y,z) &= \left(1 - \frac{k_z^2}{k_0^2 n_s^2}\right) \cos\left(\frac{k_y W}{2} - \phi_2\right) \cos(k_z z + \phi_1) \exp\left\{\gamma_{y4}\left(y + \frac{W}{2}\right)\right\}
\end{aligned}$$

但し、 $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ は真空中の光波の波数、 $k_y, k_z, \phi_1, \phi_2, \gamma_{z2}, \gamma_{z3}, \gamma_{y4}$ は固有値方程式を解いて得られる値である。

表4.1 計算に用いたLiNbO₃基板および導波層の屈折率

Pump wavelength	$\lambda = 1.064 \mu\text{m}$	$\lambda = 0.886 \mu\text{m}$
Indices	$n_s^\omega = 2.156$	$n_s^\omega = 2.167$
	$n_s^{2\omega} = 2.234$	$n_s^{2\omega} = 2.287$
	$n_f^\omega = 2.166$	$n_f^\omega = 2.179$
	$n_f^{2\omega} = 2.254$	$n_f^{2\omega} = 2.337$

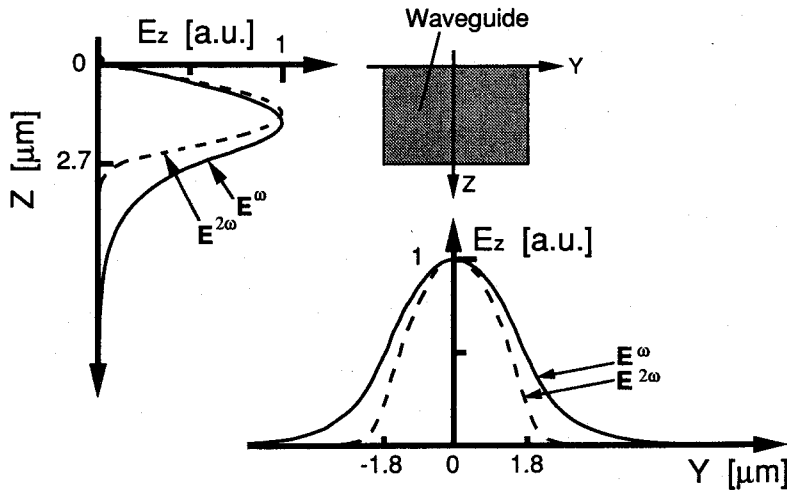


図4.3 マーカッティリの方法で求めたTM-like基本モードのプロファイル
 $(W=3.6\mu\text{m}, T=2.7\mu\text{m}, \lambda^\omega=1.064\mu\text{m}, \lambda^{2\omega}=0.532\mu\text{m})$

分散曲線と擬位相整合

$W=3.6\mu\text{m}$, $T=2.7\mu\text{m}$ のサイズを持つ導波路の分散曲線を図4.4中に実線で示す。

基板屈折率 n_s は、式(4.9)に示すセルマイヤ方程式を用いて求めた。

$$n_s^2 = 4.9048 + \frac{99210}{\lambda^2 - 44478} - 2.194 \times 10^{-8} \lambda^2 \quad (4.9)$$

ここで、 λ はナノメートルで表した真空中の波長である。また、導波路部分の屈折率 n_f は、 LiNbO_3 のプロトン交換による屈折率増加分が波長に反比例すると仮定し、波長1064nmのときの屈折率増加分0.01を参考にして表した式(4.10)を用いて計算した。

$$n_f = n_s + \frac{1064}{\lambda} \times 0.01 \quad (4.10)$$

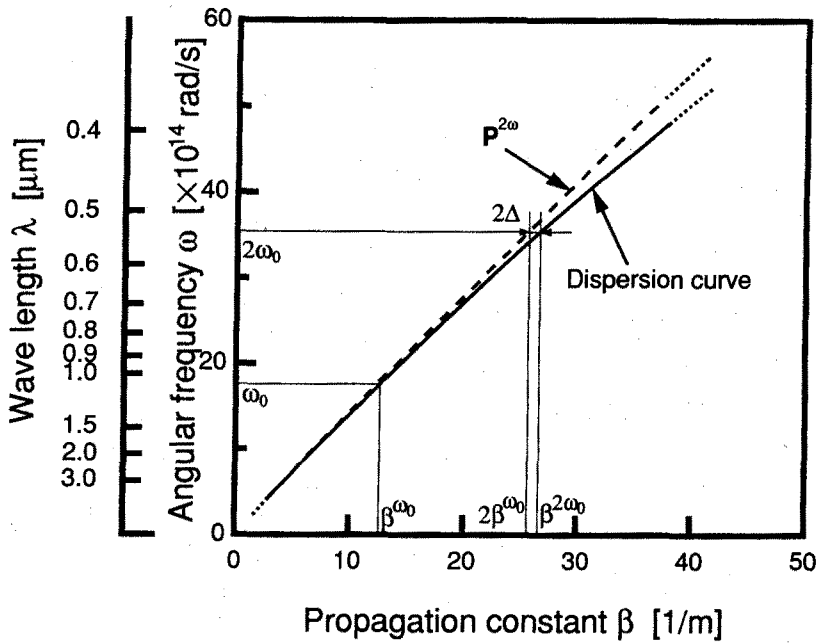


図4.4 3次元導波路($W=3.6\mu\text{m}$, $T=2.7\mu\text{m}$)のTM-like基本モードの
 ω - β 分散曲線と非線形分極波の 2ω - 2β 曲線

n_s および n_f の波長分散のために分散曲線は直線とならずに上に凸の形をしている。ここで、この分散曲線を用いてSHGの位相整合条件がどのように表されるかを検討する。図4.4の中で分散曲線に対し ω 軸方向に2倍、 β 軸方向に2倍の変換を施すことで、周波数 2ω 、伝搬定数 $2\beta^\omega$ の波を表すことができる(図4.4中の破線)。この波は、導波路中で周波数 ω の光波から生じる非線形分極波 $P^{2\omega}$ を表す。ポンプ光周波数を ω_0 とすると、この光は分散曲線上の $(\beta^{\omega_0}, \omega_0)$ で表され、このポンプ光から生じる非線形分極波は $(2\beta^{\omega_0}, 2\omega_0)$ で表される。分散曲線と、非線形分極波を表す破線とが $\omega=2\omega_0$ の所で交わっていれば次式が成立する。

$$\beta^{2\omega_0} = 2\beta^{\omega_0} \quad (4.11)$$

これは、SHGの位相整合条件にはほかならない。つまり、図4.4中の2つの曲線が交わってれば、その交点は位相整合が達成されて発生する第2高調波を表す。しかし、図4.4中には2つの曲線の交点はないので、この導波路では位相整合は達成できず位相不整合量 $2\Delta(=\beta^{2\omega_0}-2\beta^{\omega_0})$ が残ることがわかる。これをより明確にするために 2Δ を横軸として取り直すと図4.5の実線が得られる。 $2\Delta=0$ となる点が存在しないので、いかなる波長においても位相整合が達成できない。ここで、SHG係数 d が周期 Λ ($\Lambda=2\pi/K$; K は格子定数) で変調されていれば非線形分極波の伝搬定数は $2\beta^{\omega_0}+mK$ ($m=0,\pm 1,\pm 2,\dots$)のようになり、図4.4中で β 軸方向に mK だけ平行移動する。これを図4.5上で示すと破線などで示した曲線群が得られる。これらの曲線群は $\Lambda=6.4\mu\text{m}$ 、すなわち $K=1.05\mu\text{m}^{-1}$ であるとして得ら

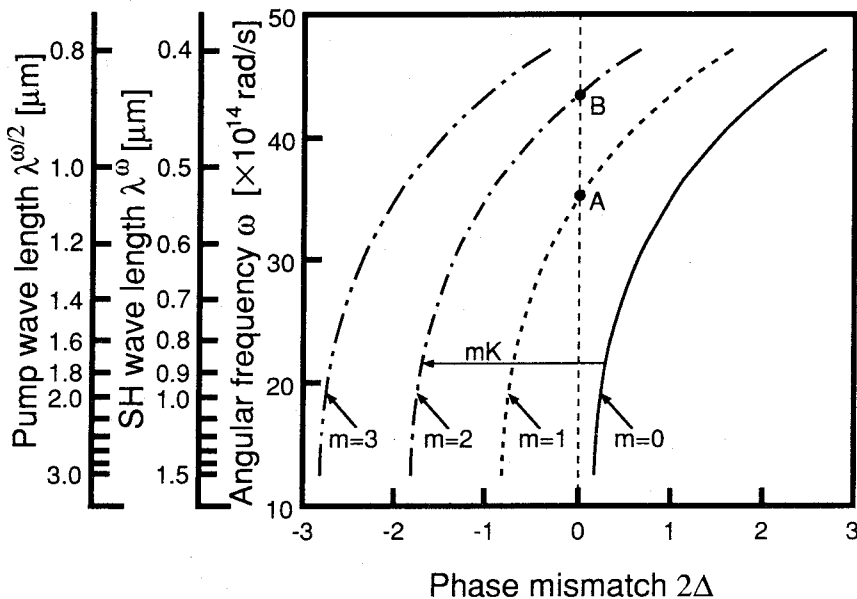


図4.5 位相不整合量の光周波数依存性 ($2\Delta=\beta^{\omega}-((2\beta^{\omega/2}+mK))$)

A:1次の擬似位相整合

B:2次の擬似位相整合

れたものである。2 $\Delta=0$ の直線との交点が位相整合の状態を表すので、位相整合が達成できなかった導波路においてもSHG係数の変調により位相整合が達成できるようになることがわかる（擬似位相整合）。また、 $m=1$ のときに基本波波長1.064 μm 付近で位相整合が達成されて第2高調波（波長0.532 μm ）が得られることがわかる（図中の点A）。

4.3 導波路サイズ依存性

グレーティングのデューティ比0.5で方形の断面形状を持ちしかも十分深い領域まで存在する理想的な分極反転グレーティング構造を仮定しSHG変換効率の導波路サイズ依存性を求めた。理想的な分極反転グレーティング構造を数式化すると、式(4.4)を参考にして次のように表すことができる。

$$d_1(y,z) = \begin{cases} 0 & (z < 0) \\ \frac{2d_{33}}{\pi} & (z \geq 0) \end{cases} \quad (4.12)$$

基本波波長を1.064 μm とし、表4.1に示した屈折率を用いてSHG変換効率の導波路幅 W および導波路厚さ T に対する依存性を調べた結果を図4.6に示す。縦軸は、相互作用長を4mmとしたときの規格化SHG変換効率である。最大規格化変換効率として450%/ W 程度が得られることがわかる。導波路サイズが小さくなる程、ポンプ光のパワー密度が大きくなるので、大きな変換効率を得られている。しかし、 W あるいは T が2 μm 以下のカットオフ付近の導波路では、導波光の閉じ込めが悪くなりかえって変換効率が低下することがわかる。

4.4 分極反転構造依存性

分極反転構造が理想的でない場合、モード分布と分極反転部分との重なりが減りSHG変換効率が低減する。そこで、第2章、第3章で調べたSiO₂装荷誘起分

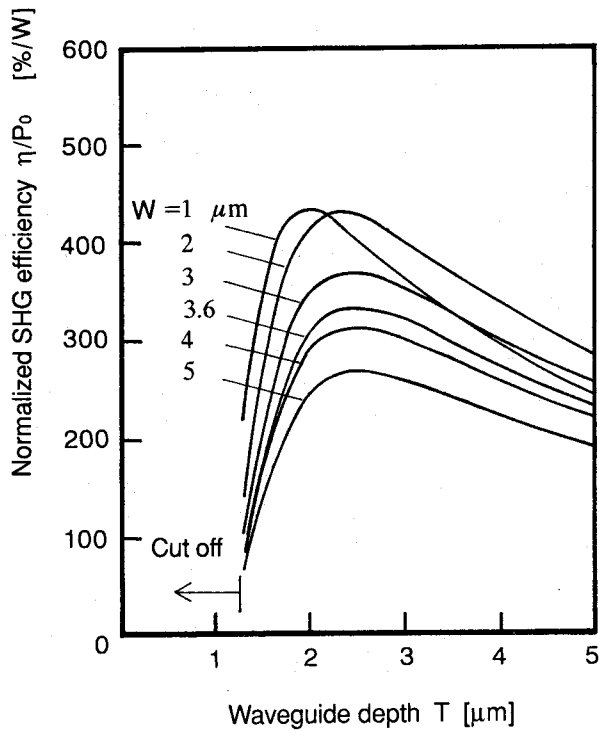
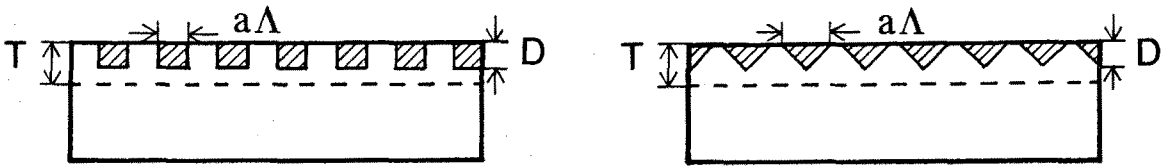


図4.6 規格化SHG変換効率の導波路サイズ依存性
(基本波波長 $1.064\mu\text{m}$, 相互作用長 4mm)

極反転法および電子ビーム走査分極反転法で得られる分極反転構造をモデル化し、それらの方法を用いて作製したデバイスでの変換効率の分極反転構造依存性を調べた。

4.4.1 SiO_2 装荷誘起分極反転構造での依存性

第2章で述べたように、分極反転グレーティングの断面構造はフッ酸・硝酸混合液によるエッチング結果だけでは断定できない。そこで、 SiO_2 装荷誘起分極反転法で作製した分極反転グレーティングの断面構造モデルとして、図4.7(a), (b)のような、グレーティングのデューティ比が0.5の浅い方形のときと、エッチングパターンと同じ浅いV形の二つのモデルを用いた。分極反転構造は深さが D で、導波路の幅方向には一様であるとし、V形モデルでの斜辺の傾きは結晶表面に対し $36^\circ(=\pi/5)$ とした。まず矩形モデルの数式化を行う。このモデル



(a) 浅い矩形モデル

(b) V形モデル

図4.7 SiO₂装荷誘起分極反転グレーティング断面構造モデル

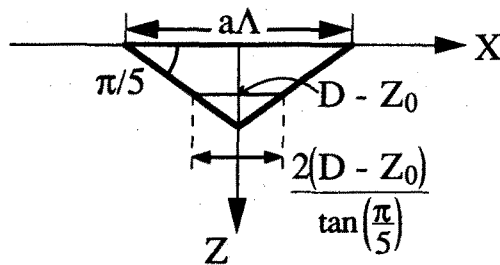


図4.8 V形モデルでの $z=z_0$ のときの分極反転幅

ではデューティ比が0.5で一定であるので、次のように表すことができる。

$$d_1(y,z) = \begin{cases} 0 & (z < 0, z > D) \\ \frac{2d_{33}}{\pi} & (0 \leq z \leq D) \end{cases} \quad (4.13)$$

図4.8はV形モデルの場合のV形分極反転部分を拡大して示したものである。図の中に示したように、 $0 \leq z \leq D$ の領域内の $z=z_0$ での分極反転幅は $2(D-z_0)/\tan(\pi/5)$ と表せるので、グレーティングデューティ比は式(4.14)のようになり、 d_1 は式(4.15)のようになる。

$$a(z) = 2(D-z)/\Lambda \tan(\pi/5) \quad (4.14)$$

$$d_1(y,z) = \begin{cases} 0 & (z < 0, z > D) \\ \frac{2d_{33}}{\pi} \sin(a(z)\pi) & (0 \leq z \leq D) \end{cases} \quad (4.15)$$

また、式(4.14)より、 Λ が $6\mu\text{m}$ 程度のとき D の最大値は($a=1$ の時) $2\mu\text{m}$ 程度であることがわかる。

ポンプ光波長を $1.064\mu\text{m}$ とし、分極反転深さに対するSHG結合係数の依存性を計算した結果を図4.9に示す。実線が方形の、破線がV形モデルの場合の結果であり、縦軸は理想的な分極反転構造のときの値を用いて規格化したSHG結合係数である。この規格化SHG結合係数は導波路厚さ T には大きな依存性を示

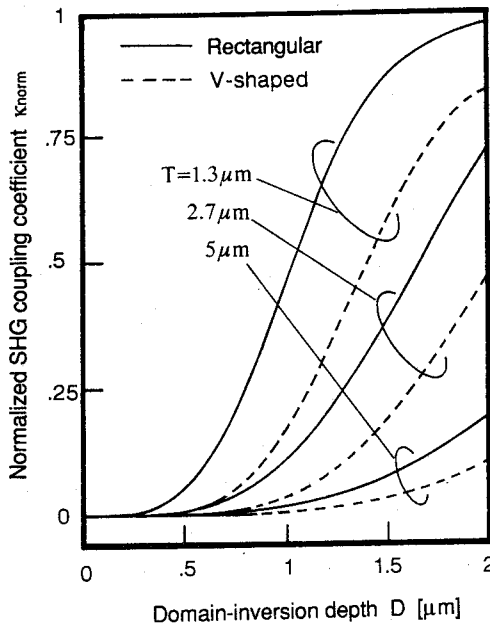


図4.9 SiO₂装荷法で作製したデバイスでの規格化SHG結合係数の分極反転深さ依存性 (基本波波長 1.064 μm)

すが、導波路幅 W にはほとんど依存しなかった。

反転形状が矩形の場合は、反転深さが深くなるにつれて理想的な反転構造に近づくため、規格化SHG結合係数は1に漸近している。矩形モデルの場合には分極反転層の全域($0 \leq z \leq D$)で $a=0.5$ が得られるのに対して、V形モデルでは、 $z \sim D - \Lambda \tan(\pi/5)/4$ となる一部の領域でしか $a \sim 0.5$ が得られないので、SHGが効率良く起こる反転層深さの範囲が狭い分だけ効率が低減する。また、いずれの場合にも、効率の低減を小さく抑えるには導波路厚さに比べてできるだけ深い分極反転層が必要であることがわかった。

図4.10に示すのは、ポンプ光波長を $0.886\mu\text{m}$ として同様の計算を行った結果である。図4.9とほぼ同じ傾向が得られているが、ポンプ光波長が短い分だけ分極反転グレーティング周期は細かくなり、深い分極反転構造が得られにくく

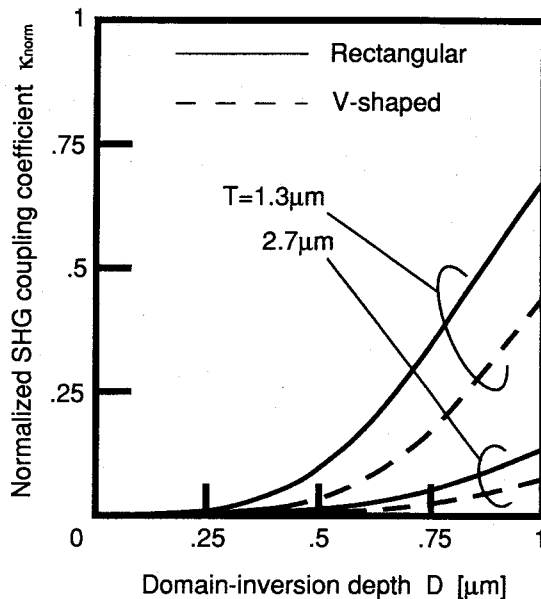


図4.10 SiO₂装荷法で作製したデバイスでの規格化SHG結合係数の分極反転深さ依存性 (基本波波長 0.886 μm)

なり性能の低減が大きく生じている。

4.4.2 電子ビーム走査分極反転構造での依存性

第3章で述べたように、電子ビーム走査で作製した分極反転断面構造は、結晶表面では針先状に尖っているものの、結晶内部ではほぼ一様である。そして、分極反転グレーティングのデューティ比が結晶内部の方が0.5に近い。これらのことを考慮すると、結晶内部での分極反転構造を用いた方がSHGの高効率化に有利である。よって、ここでは、結晶内部の分極反転構造を用いるために、分極反転グレーティングを作製した後で結晶表面層を取り去り、その上に導波路を設けているデバイスを考え、その性能を調べる。電子ビーム走査による分極反転はつながって起こらず、図3.3、図3.5のように粒塊状に寸断されて起こる傾向があるので、計算のための分極反転構造モデルとして図4.11(a)のような隣接する直径 d の円が連続するモデルを用いた。また、比較のために図4.11(b)のような帯状につながった構造での効率も計算した。導波路の深さ方向には分極反転構造は一様であるとした。まず、隣接円状モデルを数式化する。結晶表面での導波路の中心と一つの円の中心が図4.12のように一致しているとすると、図中に示すように $y=y_0$ での分極反転幅は $(d^2-4y_0^2)^{1/2}$ と表されるので、グレーテ

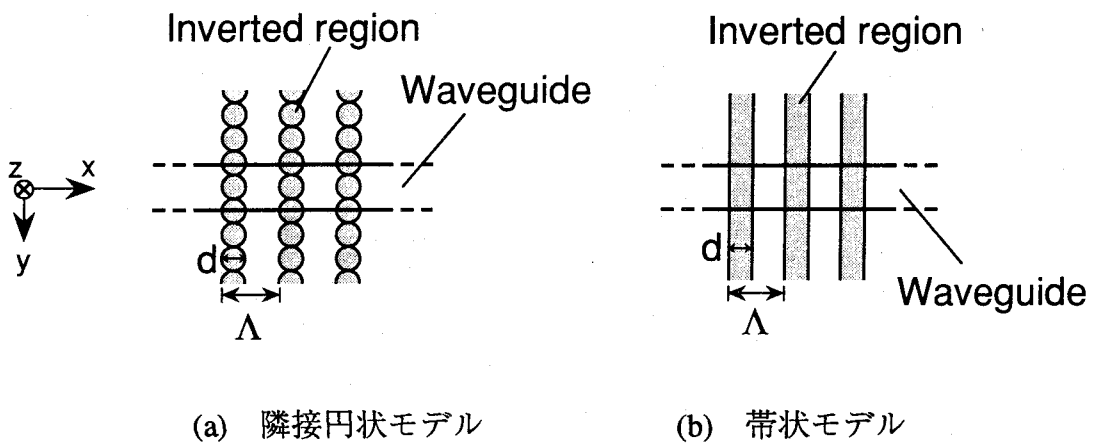


図4.11 電子ビーム走査分極反転グレーティングの表面構造モデル

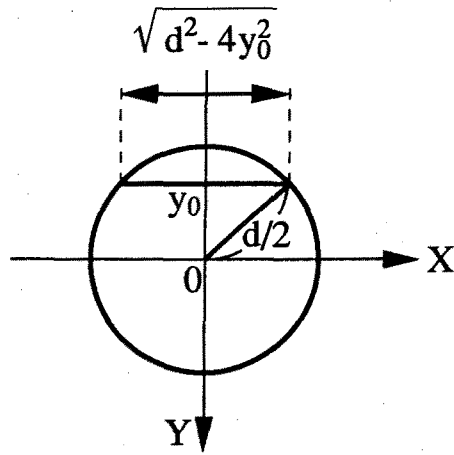


図4.12 隣接円状モデルでの $y=y_0$ の時の分極反転幅

イングのデューティ比は次のようになる。

$$a(y) = \sqrt{d^2 - 4(y - md)^2} / \Lambda \quad (4.16)$$

但し、 m は $|y - md| \leq d/2$ となるような整数である。これを用いれば図4.11(a)の隣接円状モデルは次のように表すことができる。

$$d_1(z) = \begin{cases} 0 & (z < 0, z > D) \\ \frac{2d_{33}}{\pi} \sin(a(y)\pi) & (0 \leq z \leq D) \end{cases} \quad (4.17)$$

また、帯状モデルの場合は、グレーティングのデューティ比は常に d/Λ であるので、 d_1 は式(4.18)のようになる。

$$d_1(z) = \begin{cases} 0 & (z < 0, z > D) \\ \frac{2d_{33}}{\pi} \sin\left(\frac{d}{\Lambda}\pi\right) & (0 \leq z \leq D) \end{cases} \quad (4.18)$$

基本波波長 $1.064\mu\text{m}$ ，導波路幅 $W=2.9\mu\text{m}$ ，導波路厚さ $T=3.5\mu\text{m}$ のときの，分極反転幅が一番太いところでのグレーティングデューティ比 $a=d/\Lambda$ に対する規格化SHG変換効率 η/P_0 の依存性を調べた結果を図4.13に示す。実線が帯状の，破線が隣接円状の分極反転モデルのときの結果である。帯状モデルでデューティ比が0.5の時の分極反転構造はQPM-SHGに対して理想的なものであり，そのときの規格化変換効率は $240\%/W$ である。隣接円状モデルの場合でもデューテ

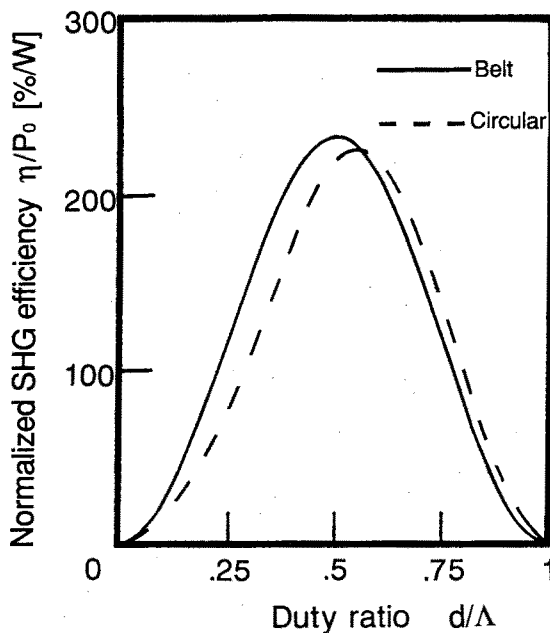


図4.13 電子ビーム走査法で作製したデバイスでの規格化変換効率のグレーティングデューティ比依存性
(基本波波長 $1.064\mu\text{m}$ ，相互作用長 3.3mm ， $W=2.9\mu\text{m}$ ， $T=3.5\mu\text{m}$)

ィ比が最適のところでは230%/Wが得られることより、分極反転が寸断されて生じている構造でもSHG変換効率の低減はあまり大きくないことがわかる。しかし、グレーティングのデューティ比の最適化ができないことによる効率低減は顕著であり、例えば、デューティ比が0.2のときには規格化効率は最大値の1/4まで減少する。

図4.14にポンプ光波長 $0.886\mu\text{m}$ として計算した結果を示す。図4.13と同じ傾向が得られている。図4.13に比べると規格化変換効率として大きな値が得られているのは、導波路幅 $W=2.6\mu\text{m}$ 、厚さ $T=1.6\mu\text{m}$ の、よりサイズの小さな導波路を仮定したためである。

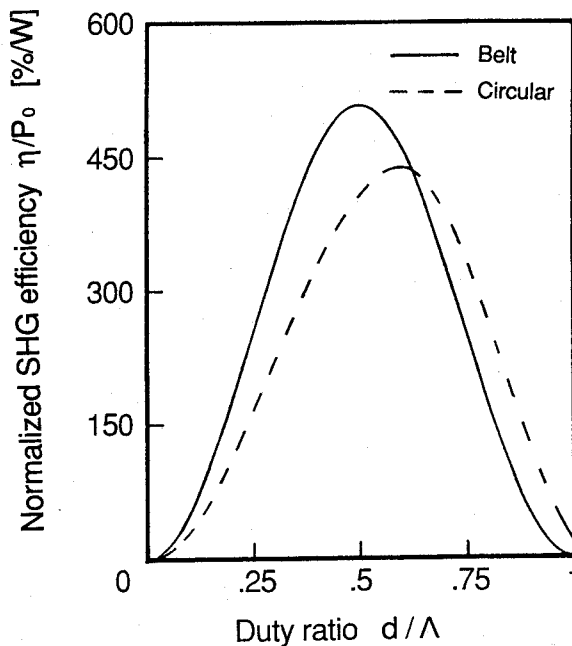


図4.14 電子ビーム走査法で作製したデバイスでの規格化変換効率のグレーティングデューティ比依存性
(基本波波長 $0.886\mu\text{m}$, 相互作用長 3.3mm , $W=2.6\mu\text{m}$, $T=1.6\mu\text{m}$)

4.5 クラッド層装荷の影響

導波路表面に高屈折率のクラッド層を設けることにより、導波光のモードプロファイルを表面付近に引き寄せることができる。この効果を調べるため、波長 $1.064\mu\text{m}$ の光が伝搬する $W=3.6\mu\text{m}$, $T=2.7\mu\text{m}$ の導波路表面に基板材料と同じ LiNbO_3 のクラッド層を装荷した場合を例にとって電界モードプロファイルの変化を調べた。クラッドがないときの導波路深さ方向の電界モードプロファイルを図4.15(a)に、クラッドがあるときの分布を(b)に示す。クラッド層装荷によりモードプロファイルが導波路表面付近に引き寄せられている。分極反転グレーティングが導波路表面から深さ $1\mu\text{m}$ までの領域内にしか存在しないとすると、グレーティングと相互作用するのは図4.15中に斜線で示した部分だけである。図4.15の(a)と(b)を比較すれば、斜線部の面積は(b)の方が大きくなっている。導波路厚さに比べ分極反転層が浅いデバイス、例えば SiO_2 装荷誘起分極反転法を用いて作製したようなデバイスでは、そのSHG変換効率の向上が期待できる。一例として、図4.7(b)のような、断面形状が深さ $1.3\mu\text{m}$ 、デューティ比 $a=0.5$ の矩形である分極反転グレーティングを仮定し、この効果を調べた結果を図4.16に示す。クラッド層は十分厚く、その屈折率 $n_{c^{\omega}}$ と $n_{c^{2\omega}}$ は LiNbO_3

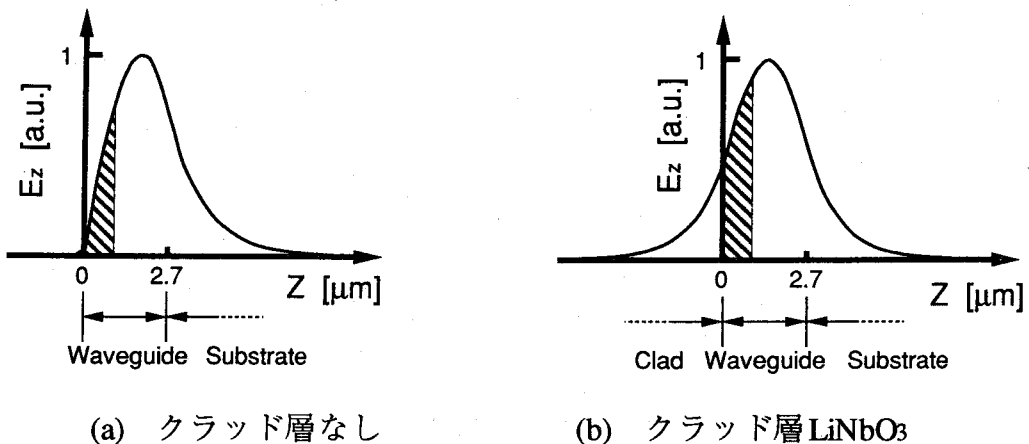


図4.15 クラッド層装荷による導波光電界モードプロファイルの変化

の波長分散をスケーリングして、 $n_c^\omega = 1+r (n_s^\omega - 1)$, $n_c^{2\omega} = 1+r (n_s^{2\omega} - 1)$ と表せるとした。 r はスケーリングの割合であり、 $r=0$ がクラッド層がない時に、 $r=1$ がクラッド層がLiNbO₃の時に対応する。クラッドの屈折率を高くするにつれて、SHG変換効率は急激に大きくなることがわかった。また、クラッド層装荷により導波路が対称導波路に近くなるので導波光閉じ込めが強くなり、SHG変換効率がさらに高くなる効果もあることがわかった。V形構造を仮定した場合も同様の効果が望める。

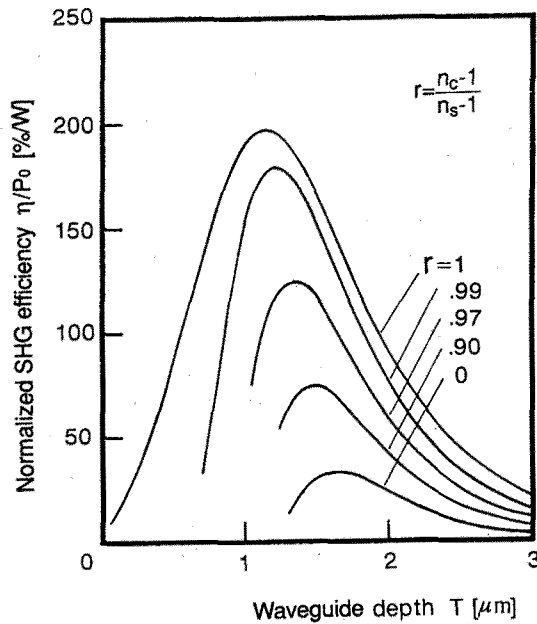


図4.16 クラッド層装荷によるSHG変換効率の改善
(r : クラッド層の屈折率増加パラメータ)

4.6 相互作用長依存性

これまでの解析で用いた、SHGによるポンプ光パワーの減衰を無視する近似 (No Pump Depletion Approximation: NPDA) の下では、SHG変換効率 η は式(4.7)

に示すように、相互作用長 L の2乗に比例する。しかし、この近似は相互作用長が長くなり、SHG変換効率が大きくなると成立しなくなる。SHG変換効率の相互作用長 L に対する依存性は、厳密には式(4.5)で与えられる。ここで、特に位相不整合量 $\Delta=0$ の場合には式(4.5)は次のようになる。

$$\eta = \tanh^2(\kappa\sqrt{P_0}L) \quad (4.19)$$

ポンプ光パワーを100mWとして、式(4.19)が示す変換効率の相互作用長依存性を図4.17に図示する。図中の実線aは分極反転構造が理想的であり、導波路幅 $W=3.6\mu\text{m}$ 、導波路深さ $T=2.7\mu\text{m}$ 、ポンプ光波長 $\lambda^\omega=1.064\mu\text{m}$ の場合（このときのSHG結合係数 $\kappa=0.45/w^{1/2}\text{mm}$ ）の結果であり、破線は同一条件でのNPDAの

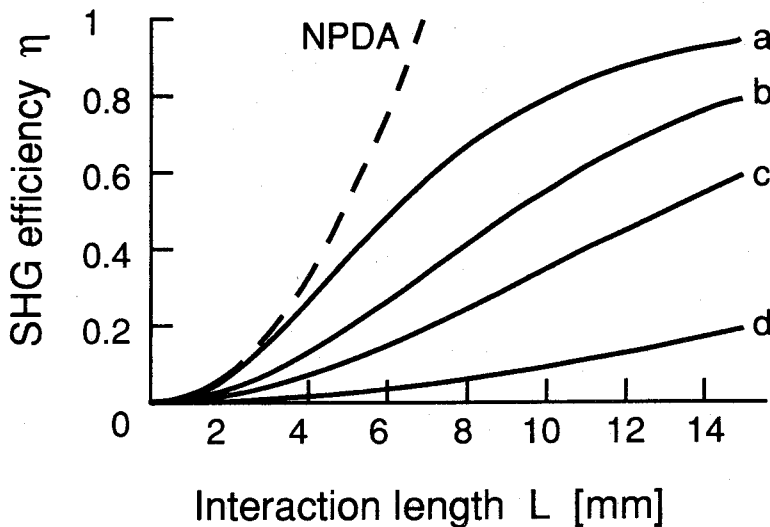


図4.17 SHG変換効率の相互作用長依存性（ポンプ光パワー100mW）

実線a：理想的分極反転構造, $W=3.6\mu\text{m}$, $T=2.7\mu\text{m}$, $\lambda^\omega=1.064\mu\text{m}$

実線b：隣接円状モデル, $d/\Lambda=0.2$, $W=2.6\mu\text{m}$, $T=1.6\mu\text{m}$, $\lambda^\omega=0.886\mu\text{m}$

実線c：隣接円状モデル, $d/\Lambda=0.2$, $W=2.9\mu\text{m}$, $T=3.5\mu\text{m}$, $\lambda^\omega=1.064\mu\text{m}$

実線d：V形モデル, $D=1.1\mu\text{m}$, $W=3.6\mu\text{m}$, $T=2.7\mu\text{m}$, $\lambda^\omega=1.064\mu\text{m}$

破線：NPDA, 理想的分極反転構造, $W=3.6\mu\text{m}$, $T=2.7\mu\text{m}$, $\lambda^\omega=1.064\mu\text{m}$

結果である。NPDAは、効率10%程度までは良い近似を与えるが、効率がそれ以上になると厳密解を用いる必要があることがわかる。図中の実線b,c,dはそれぞれ、電子ビーム走査による分極反転構造の隣接円状モデルでのグレーティングデューティ比 $d/\Lambda=0.2$ 、 $W=2.6\mu\text{m}$ 、 $T=1.6\mu\text{m}$ 、 $\lambda^0=0.886\mu\text{m}$ の場合 ($\kappa=0.30/w^{1/2}\text{mm}$)、隣接円状モデルのデューティ比 $d/\Lambda=0.2$ 、 $W=2.9\mu\text{m}$ 、 $T=3.5\mu\text{m}$ 、 $\lambda^0=1.064\mu\text{m}$ の場合 ($\kappa=0.21/w^{1/2}\text{mm}$)、 SiO_2 装荷誘起分極反転構造のV形モデルの分極反転深さ $D=1.1\mu\text{m}$ 、 $W=3.6\mu\text{m}$ 、 $T=2.7\mu\text{m}$ 、 $\lambda^0=1.064\mu\text{m}$ の場合 ($\kappa=0.10/w^{1/2}\text{mm}$)の結果を示したものである。分極反転構造の不完全性によりSHG結合係数 κ が小さい場合でも、相互作用長 L が長ければ大きな η が得られ、 $\eta=1$ とすることもできる。しかし、電子ビーム走査分極反転、 SiO_2 装荷誘起分極反転ともに、電子ビーム描画のプロセスを用いているので、 $L<10\text{mm}$ となり、現状では100mWのポンプ光パワーに対して約10%の変換効率が期待できる程度である。

4.7 デバイス設計

デバイスの構成

相互作用長が数ミリのQPM-SHGデバイスにおいて擬似位相整合を達成するためには、グレーティング周期をナノメートルのオーダーで制御することが必要である。しかし、そのような精度でグレーティング周期を制御して作製することは困難であり、作製誤差が生じる。また、式(1.4)に示したように、QPMグレーティングの周期はポンプ光とSH光の導波路実効屈折率で決まる。しかし、導波路実効屈折率を正確に見積ることは難しいので、位相整合のとれるグレーティング周期に不確定さが残る。このようなことが原因で、QPM-SHGデバイスには位相整合誤差が残留する。この残留位相整合誤差を補償して高効率なSHGを達成するために図4.18のようなデバイス構成を用いた。このデバイス構成は石亀らにより提案されたものであり²¹⁾、扇形構造をした分極反転グレーティングとチャンネル導波路アレーを組み合わせた構成となっている。各チャンネルに

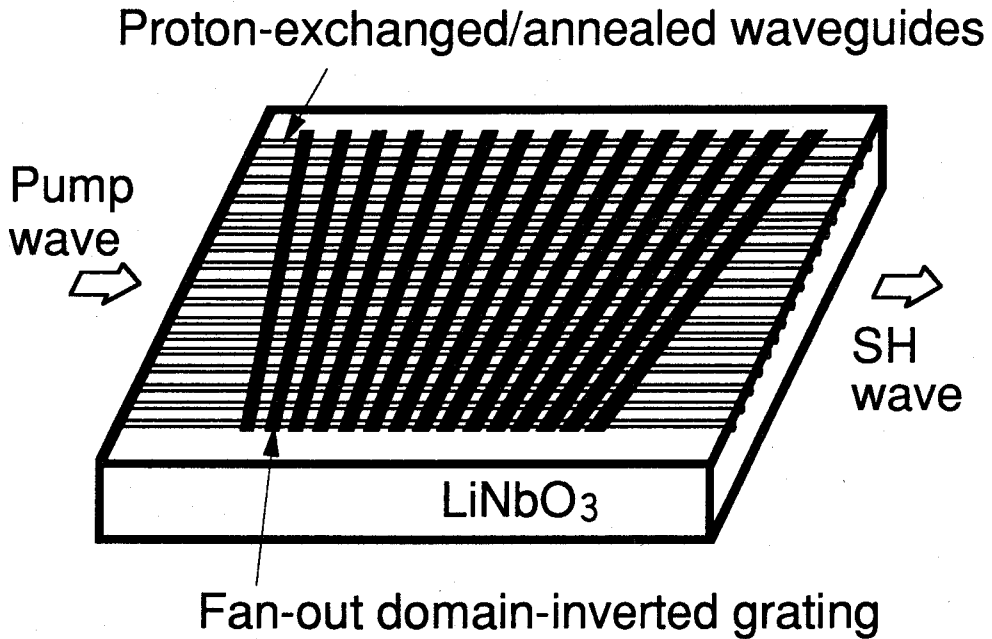


図4.18 残留位相整合誤差補償導波路形QPM-SHGデバイス

おける分極反転グレーティングの周期は少しづつ異なるので、最適チャネルを選択して導波光を励振することにより残留位相整合誤差を最小に抑えることができる。

デバイスの設計

このデバイスを設計するためのポイントは次の三つである。

- ①理論上のSHG最大変換効率，すなわち，完全に位相整合が達成された場合のSHG変換効率をいくらに設定するか。
- ②位相整合が達成されるグレーティング周期 Λ_0 の不確かさをどの程度と見積るか。
- ③最適チャネルを選択してSHGを行ったとき，極僅かに残る位相整合誤差に起因して生じる変換効率の低減をどの程度まで許容するか。

上記①は各導波路チャネルのサイズ（幅 W ，深さ T ），②は扇形グレーティン

グでの最大周期 Λ_{\max} と最小周期 Λ_{\min} , ③はアレー化するチャンネル導波路の本数 M を決定する。

以下に, ポンプ光波長 λ^ω が $1.064\mu\text{m}$ である緑色光発生用SHGデバイスの設計を例にとってデバイス設計の手順を示す。

①導波路サイズを決定する。

図4.6に示したように, SHG変換効率を大きくするためには, 導波路サイズはカットオフに近付かない範囲内でできるだけ小さい方がよい。しかし, その条件はきわどいものであるので, 再現性良く作製することが難しい。そこで, 多少大きめの導波路サイズ, すなわち, 導波路幅 $W\sim 3\mu\text{m}$, 深さ $T\sim 3\mu\text{m}$ とした。分極反転構造が理想的であるとする, このときのSHG規格化変換効率は, 図4.6より, 約 $350\%/W$ あることがわかる。

②グレーティング周期 Λ_0 の不確定さを見積って, 扇形分極反転グレーティングの最大周期 Λ_{\max} と最小周期 Λ_{\min} を決定する。

完全な位相整合を達成するグレーティングの周期 Λ_0 は次式で与えられる。

$$\Lambda_0 = \lambda^\omega / 2(N^{2\omega} - N^\omega) \quad (4.20)$$

ここで, λ^ω はポンプ光波長で, N^ω , $N^{2\omega}$ はそれぞれ, ポンプ光, SH光に対する導波路実効屈折率である。チャンネル導波路をプロトン交換とアニールにより作製した場合のポンプ光とSH光に対する導波路部分での屈折率増加分は, 表4.1に示すようにそれぞれ, $\Delta n^\omega \sim 0.01$, $\Delta n^{2\omega} \sim 0.02$ である。 $N^\omega \sim n_e^\omega + \Delta n^\omega / 2$ ($=2.161$), $N^{2\omega} \sim n_e^{2\omega} + \Delta n^{2\omega} / 2$ ($=2.244$) であるとする, $N^{2\omega} - N^\omega$ ($\sim \pm 0.083$) の不確定さは $\pm \Delta n^{2\omega} / 2$ (± 0.01) よりも小さいと見積れる。式(4.20)より, このときの Λ_0 の不確定さが $\pm 10\%$ であることがわかる。扇形グレーティングの中心周期として, 上記の N^ω , $N^{2\omega}$ より求められる値 $6.4\mu\text{m}$ を用いれば, $\Lambda_{\min} = 5.76\mu\text{m}$, $\Lambda_{\max} = 7.04\mu\text{m}$ と決まる。

③SHG変換効率の低減許容幅よりチャンネル導波路の本数 M を決定する。

チャンネル本数をMとすると、隣接チャンネル間でのグレーティング周期の差 $\Delta\Lambda$ は、

$$\Delta\Lambda = (\Lambda_{\max} - \Lambda_{\min}) / M \quad (4.21)$$

で与えられる。最適なチャンネルを選んでポンプ光を励振してSHGを行う場合のグレーティング周期の Λ_0 からの最大誤差は $\Delta\Lambda/2$ であり、この時の位相不整合量は式(4.3)より

$$2\Delta = \frac{2\pi}{\Lambda_0} - \frac{2\pi}{\Lambda_0 + \Delta\Lambda} \approx \frac{\pi \Delta\Lambda}{\Lambda_0^2} \quad (4.22)$$

となる。

また、式(4.7)より位相不整合量 Δ によるSHG変換効率の低減は、SHG相互作用長がLの時に $(\sin(\Delta L)/\Delta L)^2$ で表されるので、 $\Delta\Lambda$ によるSHG変換効率の低減として1/2までの低減を許容するならば、次式が得られる。

$$|\Delta L| < 1.4 \quad (4.23)$$

$L=4\text{mm}$ とすると式(4.21)~(4.23)より $|\Delta\Lambda| < 8.8\text{nm}$ 、すなわち、 $M > 142$ が得られる。チャンネル本数が多いほどSHG変換効率の低減は小さく抑えることができる。しかし、チャンネル導波路作製のためのパターンニング面積に制限がある場合にはチャンネル本数に反比例して隣接チャンネルとの間隔が小さくなり、チャンネル間で光波の結合を起こすようになる。そこで、チャンネル間隔を $15\mu\text{m}$ に固定し、しかも $M > 142$ となるようにチャンネル本数Mを選んだ。

表4.2に緑色光発生用のQPM-SHGデバイスの設計パラメータをまとめる。

表4.2 緑色光発生導波路SHGデバイスの設計パラメータ
(ポンプ光波長1.064 μm , SH光波長0.532 μm)

		SiO ₂ device		EB device	
Domain-Inverted Grating					
Period	max	7.04	μm	7.04	μm
	min	5.76	μm	5.76	μm
	difference between adjacent channels	4.6	nm	7	nm
Interaction Length		4	mm	3.3	mm
Waveguide					
Number of Channels		278		185	
Channel mask width		3	μm	3	μm
Channel separation		15	μm	15	μm

4.8 結言

導波路形擬似位相整合SHGデバイスの理論解析を行い、SHG変換効率の導波路サイズに対する依存性、分極反転構造に対する依存性を明らかにした。導波路サイズとしては、カットオフ近傍にならない範囲内で小さい方が導波光パワー密度が上がり高効率を得られる。SiO₂装荷による分極反転構造を用いると、その分極反転層深さが導波路厚さに比べ深くなりにくいことによる効率低減が生じる。この傾向は、周期の細かいグレーティングにおいて顕著になるので、SiO₂装荷で作製した分極反転グレーティングは、比較的長い波長を発生するSHGデバイスに適していると言える。電子ビーム走査で作製した分極反転構造では、分極反転が寸断されて生じることの効率への影響は小さいもののデューティ比が小さいことによる性能の低減が大きく現れることがわかった。また、高屈折率クラッド層の装荷は導波光モードプロファイルを導波路表面付近に引

き寄せるので、分極反転領域が導波路厚さに比べ浅いSiO₂分極反転を用いたデバイスでの効率の大きな向上を実現することを見出した。

導波路の実効屈折率の見積り誤差などにより生じる残留位相整合誤差を補償することのできる、扇形分極反転グレーティングとチャネル光導波路アレーを組み合わせたデバイス構成を示し、その設計手順を示した。

本章で行った計算は単一周波数のポンプ光を用いた場合を仮定して行った。しかし、ポンプ光光源が多くの縦モードにおいて発振し、しかもその全ての縦モード波長がデバイスのSHG波長受容幅内にある場合には、理論的にSHG変換効率が単一周波数の場合の2倍になることが報告されている⁶¹⁾。このことは、本章で得られた理論値と実験値とを比較するときに考慮する必要がある。

第5章 緑色光発生用デバイスの作製と評価^{25),26),28)}

5.1 緒言

本章では、第4章で設計した残留位相整合誤差補償導波路形擬似位相整合第2高調波発生デバイスの試作と、波長 $1.064\mu\text{m}$ のNd:YAGレーザ光をポンプ光として用いて行った緑色光発生SHG実験の結果を示す。まず、4.7で行った設計にもとづいたデバイス作製について述べる。分極反転グレーティングの作製に SiO_2 装荷誘起分極反転法を用いたデバイスと、電子ビーム走査分極反転法を用いたデバイスの、2つのデバイスを試作し実験を行った。SHG実験により得られた結果を示し、第4章で得られた理論効率との比較を行う。また、本研究では光導波路はプロトン交換により作製するが、その際、表面付近の分極反転構造が消滅することを見出したので、それについても述べる。

5.2 作製

分極反転グレーティングの作製法として、 SiO_2 装荷による方法と電子ビーム走査による方法の二つを用いたので、それぞれの方法による分極反転グレーティング作製パラメータについて述べる。

まず、 SiO_2 装荷による方法での分極反転について述べる。 SiO_2 薄膜の堆積は有機Si化合物溶液を LiNbO_3 +Z面上にスピンコートし、 400°C で30分ベーキングして作製した(ゾルーゲル法)。レジストパターンニングは電子ビーム直接描画法を用いて行い、 SiO_2 膜へのパターン転写は CF_4 とArの混合ガスを用いた反応性イオンエッチング(RIE)で行った。つぎに、 1000°C 、2時間の熱処理を行って分極反転を誘起し、最後にフッ酸緩衝溶液(BHF)によるエッチングで SiO_2 装荷層を取り去って相互作用長4mmの分極反転グレーティングを得た。

電子ビーム走査による分極反転グレーティング作製について述べる。まず、 LiNbO_3 の+Z面に直流スパッタ法により金薄膜を $0.1\mu\text{m}$ 堆積した。つぎに、-Z面上にて電子ビーム走査を行い分極反転グレーティングを作製した。電子ビー

ムの走査は、スポット中心間隔が $2.3\mu\text{m}$ の断続的走査、線電荷密度が 30nC/cm の条件で行った。3.4で述べたように、電子ビーム走査分極反転グレーティングの面積は数平方ミリ程度で制限される。そこで、図5.1のように、横幅が $1/3$ の短冊形のグレーティング構造を用いることによりSHG相互作用長 3.3mm を実現した。

つぎに、光チャネル導波路アレーの作製について述べる。導波路形SHGデバイスの光導波路には低損失で光強度耐性が大きいことが求められる。そこで、 1dB/cm 以下と低損失でしかも可視光による損傷の閾値が 35kW/cm^2 程度⁶²⁾とTi拡散導波路より4桁ほど高い導波路を得ることのできる、プロトン交換法により導波路を作製した。プロトン交換法によるチャネル光導波路アレー作製手順を図5.2に示す。分極反転グレーティングを作製した後、電子ビーム描画により導波路チャネルパターンを作製、真空蒸着した厚さ約 100nm のアルミ薄膜を

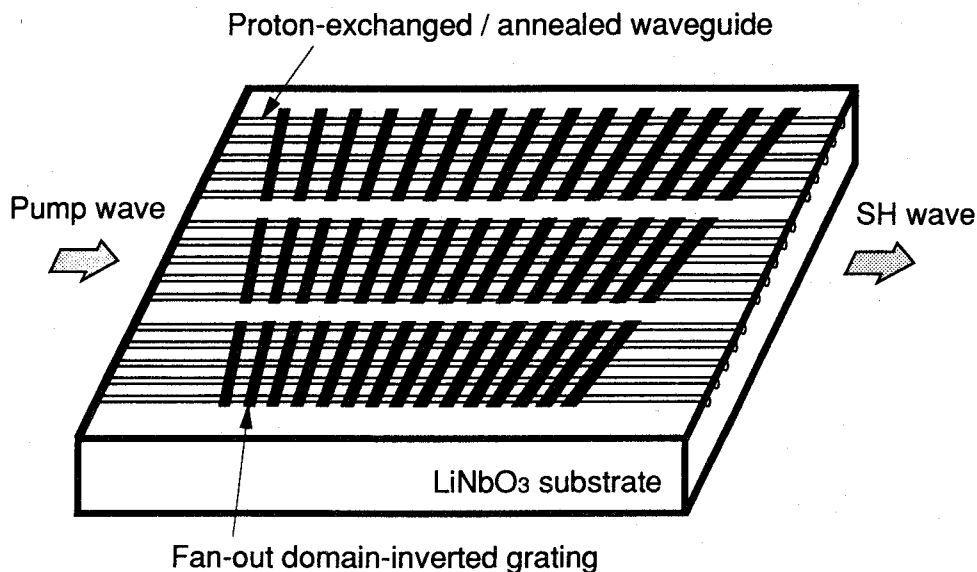


図5.1 電子ビーム走査分極反転法を用いて作製した残留位相整合誤差補償導波路形QPM-SHGデバイス

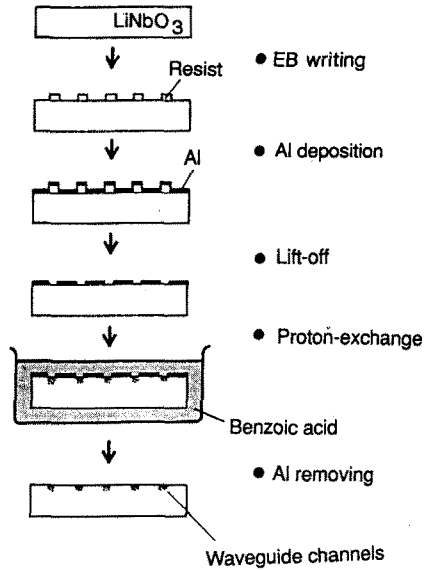


図5.2 プロトン交換によるチャンネル導波路作製

リフトオフして、選択プロトン交換用のマスクパターンを作製した。ガラスチューブオープン内にて205℃に保たれている溶融純粋安息香酸の中で30分間プロトン交換した。良好な導波特性を得るために大気中で350℃、4~5時間のアニールをして導波路を得た。最後に、導波路入出力端面を研磨して作製した。

5.3 プロトン交換による分極反転グレーティング構造の消滅

分極反転グレーティング作製とプロトン交換を行ったサンプルをフッ酸・硝酸混合液によりエッチングすることにより、プロトン交換により分極反転グレーティングの結晶表面近くの構造が消滅してしまうことがわかった。図5.3にエッチング結果を示す。この分極反転グレーティングの周期は3.5 μm で SiO_2 分極反転により作製し、プロトン交換は205℃で30分、アニールは350℃で6時間行った。プロトン交換により LiNbO_3 の+Z面もエッチングされるようになり、分極反転グレーティング構造が消滅してしまっていることがわかる。安息香酸

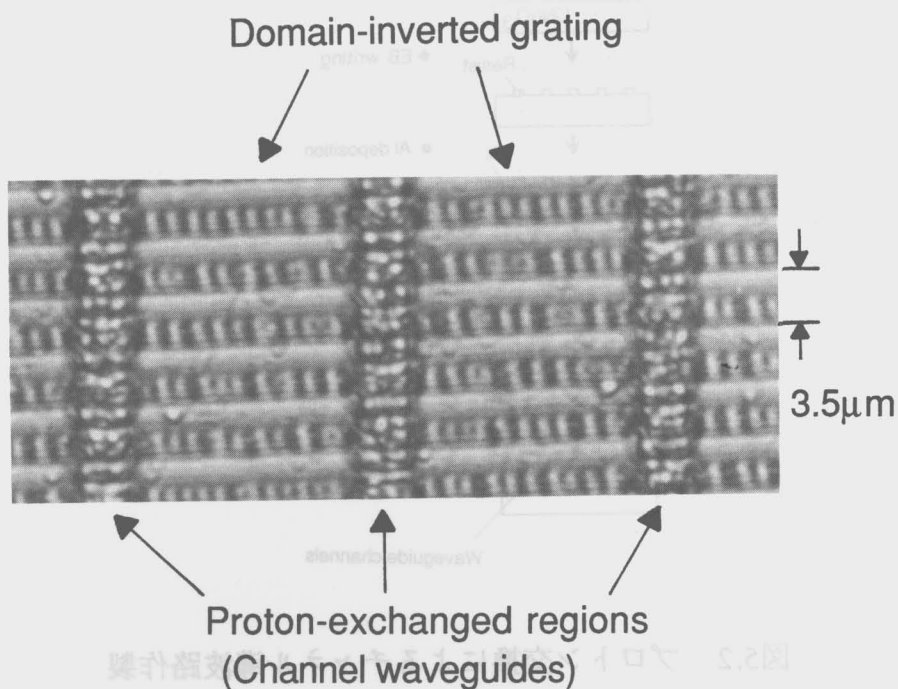


図5.3 プロトン交換後の分極反転構造 (エッチング結果)

リチウムを1mol%加えた安息香酸でプロトン交換を行ってもやはり同様の結果が得られた。分極反転構造が消滅してしまう深さは、プロトン交換の時間によって変わり、アニールの条件には依存しなかった。これより、プロトン交換によりプロトンが入った領域内で分極反転構造が消滅し、アニールによりプロトンが拡散した領域では分極構造は維持されると考えられる。このような分極反転構造の消滅は、プロトン交換によりLiNbO₃のSHG係数が減少する現象⁶³⁾⁻⁶⁶⁾と関係していると思われる。

5.4 SiO₂装荷誘起分極反転を用いたデバイスでの第2高調波発生実験

5.4.1 実験結果

SiO₂装荷分極反転法を用いて作製したデバイスに、波長1.064 μmのCW-

Nd:YAGレーザ光を端面結合してTM-like基本モードを励振して緑色光発生SHG実験を行った。その実験光学系を図5.4に示す。導波路内のポンプ光，SH光のパワーの測定値としては導波路からの出射光をレンズとアパーチャを通して測定した値を用いた。迷光やポンプ光パワー揺らぎの影響を防ぐために，光チョッパとロックインアンプを用いるとともに，出力信号を30秒の時定数をもつ積分器で平均化して測定を行った。

図5.4中に示すように，デバイスを光軸に対して横方向にスライドさせて，導波光を励振するチャンネルを順次選択して行くと，周期 $5.961\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングを持つチャンネル光導波路からほぼ位相整合のとれた強い導波モードのSH光を得ることができた。そのSH光の近視野像とその強度分布を図5.5に示す。その強度分布の半値全幅は導波路幅方向に $1.7\mu\text{m}$ ，深さ方向に $1.6\mu\text{m}$ であった。波長 $0.532\mu\text{m}$ の緑色の光が得られている。また，SHG変換効率のポンプ光パワー依存性を図5.6に示す。SHG変換効率は式(4.7)に表されているようなポンプ光パワーに比例した結果が得られ，その傾きを示す規格化変換効率と

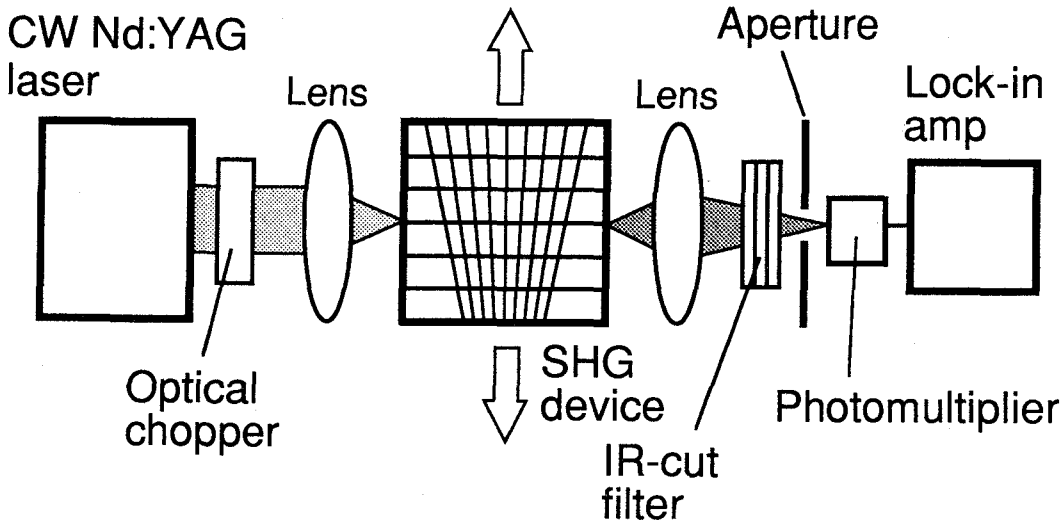


図5.4 緑色光発生SHG実験光学系

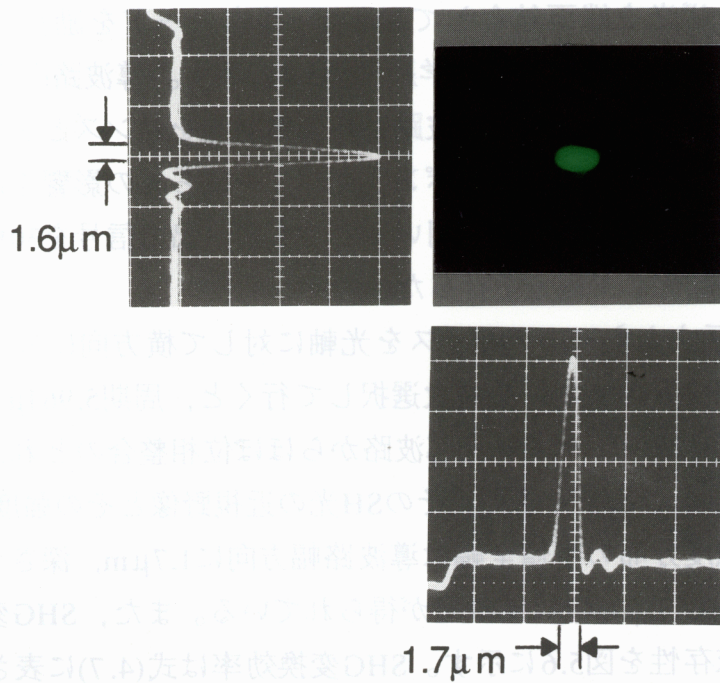


図5.5 SiO₂装荷法で作製したデバイスからのSH光近視野像（波長0.532μm）

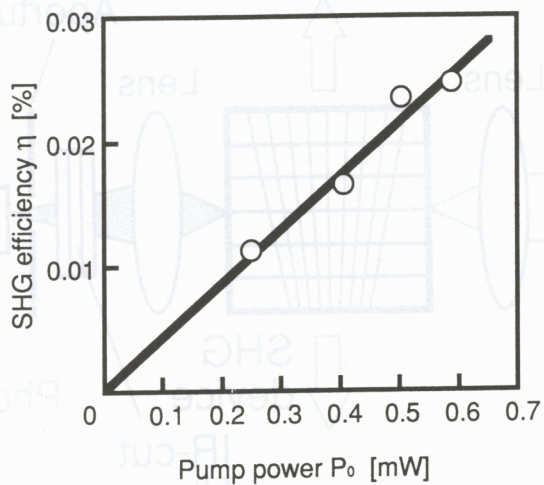


図5.6 SiO₂装荷法で作製したデバイスのSHG変換効率のポンプ光パワー依存性

して45%/Wが得られた。また、デバイスステージを自動的にシフトしてアレー状のチャンネル導波路に順次光を結合し、出射SH光パワーの変化を記録した。位相整合のとれたチャンネル付近での結果を図5.7に示す。破線で示した理論曲線とほぼ一致しているが、導波路の欠陥が原因と考えられる大きなずれも見られる。また、これより、グレーティング周期に関するSHGの受容半値全幅は約9nmであることがわかる。

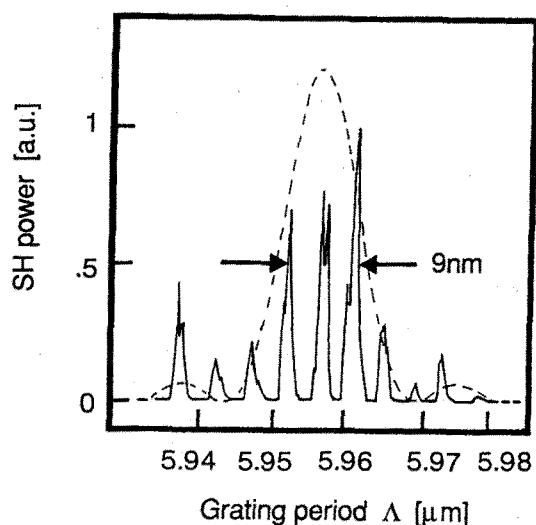


図5.7 SiO₂装荷法で作製したデバイスのグレーティング周期に対するSH光パワー依存性（実線：測定結果，破線：理論曲線）

5.4.2 理論値との比較検討

多くのチャンネルの中に、ほぼ位相整合のとれる分極反転周期を持つチャンネルを見出すことができた。また、グレーティングの周期に関するSHGの受容半値全幅として9nmを得た。この測定値は4.7で示した設計値と良く一致した。これらの結果は、4.7で行ったデバイス設計における Λ_{max} , Λ_{min} の決定およびチャンネル本数Mの決定方針の正しさを示している。

プロトン交換とアニールで作製した導波路の屈折率分布はグレーデッド形であるが、第4章で行った解析ではステップ形を仮定した。そのため、実際の導波路でのモード分布と解析に用いるモード分布は完全には一致しない。そこで、理論計算に対して実効導波路サイズを導入した。この実効導波路サイズとは、そのサイズを用いて式(4.8)から求めたポンプ光強度分布の半値全幅が測定値と一致するように求めた導波路サイズのことである。以下、この実効導波路サイズを用いた理論計算結果と実験結果とを比較する。測定により求めたポンプ光強度分布の半値全幅は、幅 $2.7\mu\text{m}$ 、深さ $1.8\mu\text{m}$ であり、これと同じ半値全幅を与えるステップ導波路のサイズは、 $W=3.6\mu\text{m}$ 、 $T=2.7\mu\text{m}$ である。

最大SHGパワーの得られた周期 $5.961\mu\text{m}$ の分極反転グレーティングでのエッチング深さ D は $1.1\mu\text{m}$ である。しかし、分極反転断面構造はエッチングでは断定できないので、①V形で深さが $1.1\mu\text{m}$ 、②矩形で深さが $1.1\mu\text{m}$ 、③矩形で深さが表面での反転幅の半分である $1.5\mu\text{m}$ の3通りの場合を仮定する。作製したデバイスの波長受容幅は約 1.2nm と見積られ、実験には縦モードマルチNd:YAGレーザを使用したので、デバイスの理論SHG変換効率を図4.6と図4.9から得られる値の2倍になり、それぞれ① $2\%/W$ 、② $15\%/W$ 、③ $95\%/W$ となる。

実験値は、 $45\%/W$ であり、②と③の間である。このことは、 SiO_2 装荷分極反転法により作製した分極反転領域の断面構造がV形よりむしろ矩形に近いのか、反転層深さがエッチング深さより深いことを示唆している。

5.5 電子ビーム走査分極反転を用いたデバイスでの第2高調波発生実験

5.5.1 第2高調波発生実験

電子ビーム走査分極反転法を用いて作製したデバイスで緑色光発生SHG実験を行った。実験の方法、光学系などは SiO_2 分極反転デバイスでの実験と同じである。グレーティング周期 $6.459\mu\text{m}$ のチャンネル導波路において、位相整合のとれたSH光が観測できた。その近視野像と強度分布を図5.8に示す。その強度分布の半値全幅は導波路幅方向に $1.4\mu\text{m}$ 、深さ方向に $0.9\mu\text{m}$ であった。また、

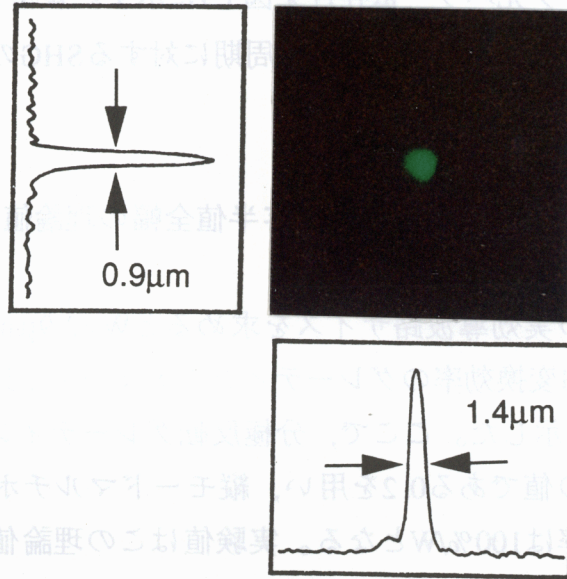


図5.8 電子ビーム走査法で作製したデバイスからのSH光近視野像
(波長 $0.532\mu\text{m}$)

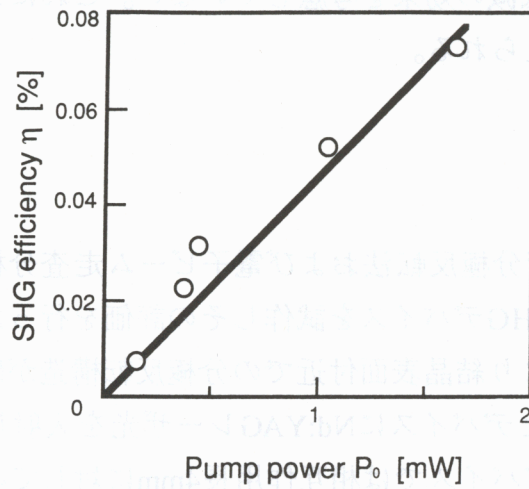


図5.9 電子ビーム走査法で作製したデバイスのSHG変換効率の
ポンプ光パワー依存性

SHG変換効率のポンプ光パワー依存性を図5.9に示す。規格化SHG変換効率として50%/Wが得られた。グレーティング周期に対するSHGの受容半値全幅は14nmであった。

5.5.2 理論値との比較検討

グレーティング周期に対するSHG受容半値全幅の理論値は11nmであり、測定値14nmとほぼ一致した。

このデバイスでの実効導波路サイズを求めると $W=2.9\mu\text{m}$, $T=3.5\mu\text{m}$ であった。このときのSHG変換効率のグレーティングデューティ比に対する依存性の計算結果は図4.13に示した。ここで、分極反転グレーティングのデューティ比として結晶内部での値である0.2を用い、縦モードマルチポンプの効果を考慮すると理論変換効率は100%/Wとなる。実験値はこの理論値の半分程度しかない。このデバイスは作製時に結晶表面層の除去を行わなかったため、結晶表面付近で分極反転領域が尖っていることによる効率の低減がある。しかし、理論計算は表面層を除去して結晶内部での分極反転構造を用いるデバイスを仮定して行ったため、この低減の効果を考慮していない。これにより実験値と理論値に違いが生じたと考えられる。

5.6 結言

本章では、 SiO_2 装荷分極反転法および電子ビーム走査分極反転法を用いて導波路形擬似位相整合SHGデバイスを試作しその評価を行った。導波路作製に用いるプロトン交換により結晶表面付近での分極反転構造が破壊されることを明らかにした。試作したデバイスにNd:YAGレーザー光を入射して緑色発生SHG実験を行い、 SiO_2 装荷デバイスでは相互作用長4mmに対して45%/W、電子ビーム走査デバイスでは相互作用長3.3mmに対して50%/Wの規格化変換効率を得た。これらの値は、 LiNbO_3 分極反転グレーティングを用いた緑色光発生用導波路SHGデバイスとしてはこれまでの報告例^{19),21)}を上回るものであり、 SiO_2 装荷

誘起分極反転法と電子ビーム走査分極反転法のいずれもが、 LiNbO_3 導波路形 QPM-SHG デバイス作製に対し適していることがわかった。理論値との比較により、 SiO_2 装荷誘起分極反転での反転構造は、エッチングで現れた浅い V 形の形状より矩形に近く深いのではないかと示唆された。電子ビーム走査デバイスでは得られた効率は理論値の半分程度であった。これは、結晶表面付近で反転領域が針先状に尖っていることが原因と考えられる。さらに厳密に理論値と実験値を比較するためには、理論計算において導波路のグレーデッド形の屈折率分布、プロトン交換による SHG 係数の減少、導波損失の考慮などが必要である。

第6章 青色光発生用デバイスの作製と評価^{27),28)}

6.1 緒言

LiNbO₃青色光発生用導波路形QPM-SHGデバイスでは分極反転グレーティングの周期は約3 μ mであり、緑色光発生デバイスに比べると作製は難しくなる。

SiO₂装荷分極反転法により周期3 μ m程度の分極反転グレーティングを持つ、デバイスを作製し青色光発生SHG実験を行ったが、良い効率は得られなかった。この方法で作製した周期が細かい分極反転グレーティングでは、図6.1のように深い反転領域が得られず、導波光との重なりが少ないため高効率が得られにくい上、5.4で述べたプロトン交換による結晶表面付近の分極反転構造の消滅の効果が加わって、十分な効率が得られなかったのだと考えられる。

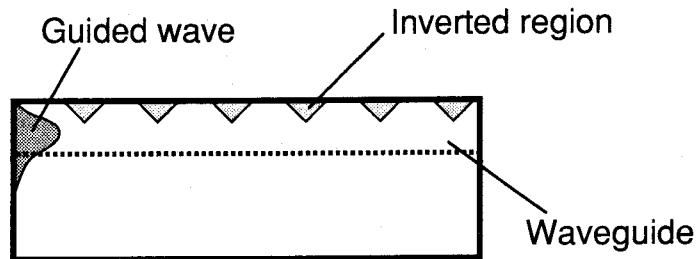


図6.1 SiO₂装荷法で作製した青色光発生用微細周期分極反転グレーティングの断面構造

本章では、電子ビーム走査で作製した分極反転グレーティングを用いた青色光発生用デバイスにおけるSHG実験について述べる。まず、周期6 μ m程度の分極反転グレーティングの2次のフーリエ成分を用いた、2次QPM-SHGによる青色光発生実験について述べる。次に、周期3 μ m程度の分極反転グレーティングを用いた1次QPM-SHGによる青色光発生実験を行った結果について述べる。

6.2 2次擬似位相整合第2高調波発生

分極反転グレーティングデューティ比が0.5でない場合、SHG係数の周期的符号反転構造をフーリエ展開して表したときに基本周期の2倍の周波数を持つ2次の成分が生じる。このため、式(6.1)のように格子定数Kに対して2Kの成分を用いた擬似位相整合が達成できる。

$$\beta^{2\omega} - (2\beta^{\omega} + 2K) = 0 \quad (6.1)$$

2次のQPMによれば、周期 $6\mu\text{m}$ 程度の分極反転グレーティングを用いたデバイスで青色のSH光を得ることができる（図4.5中の点B）。2次の成分を用いるため高効率を期待することはできないが、デバイス作製は容易となる。5.6において緑色光発生実験に用いたデバイスで2次QPM-SHGによる青色光発生実験を行った。

実験光学系を図6.2に示す。ポンプ光光源としては、発振波長可変のTi:Al₂O₃

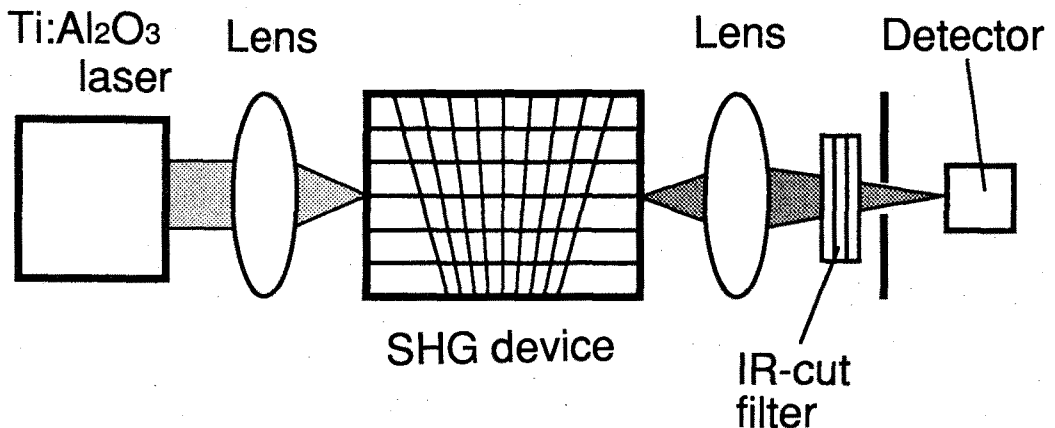


図6.2 青色光発生SHG実験光学系

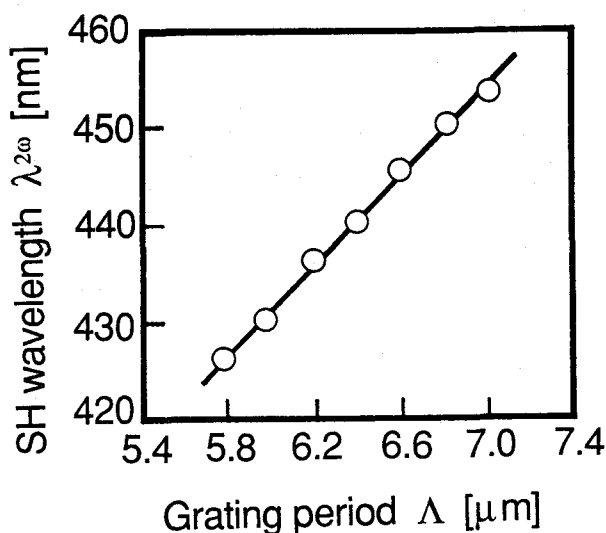


図6.3 2次QPM-SH波長のグレーティング周期依存性

レーザを用い、各チャンネルに合わせて波長を選ぶことで2次QPMによる青色SH光を得ることができた。色々な導波路チャンネルにポンプ光を結合してSHG実験を行うことで、グレーティング周期に対する2次QPM-SH光波長の依存性を調べた結果を図6.3に示す。紫色～青色（波長 $0.425\mu\text{m}\sim 0.455\mu\text{m}$ ）のSH光が得られた。これらの結果より、1次QPM-SHGによる青色光発生の見通しが得られた。

6.3 1次擬似位相整合第2高調波発生

6.3.1 デバイス作製

1次擬似位相整合導波路形SHGデバイスとして、相互作用長を3.3mmの扇形分極反転グレーティングを持ったデバイスを作製した。分極反転グレーティングの周期は $3\mu\text{m}\pm 10\%$ とした。デバイス作製方法は5.3で述べたものと同じであるが、分極反転グレーティングはビームスポット中心間隔 $0.6\mu\text{m}$ の断続的走査、線電荷密度 12nC/cm の電子ビーム走査で、チャンネル導波路は 205°C 、20分

のプロトン交換と350℃、4時間のアニールで作製した。また、チャンネル導波路作製の前に、約100 μm 厚さの結晶表面層を研磨して取り除くことにより、結晶内部の分極反転構造を用いることのできるようにして、SHG高効率化を図った。

6.3.2 第2高調波発生実験

まず、表面層を取り除かずに作製したデバイスに対し、図6.2の実験光学系を用いSHG実験を行ったが、良い効率を得ることはできなかった。これは、図6.4に示すように、このデバイスでは緑色光発生用のデバイスに比べるとプロトン交換時間が20分と短かった分だけ導波路が浅くなり、結晶表面付近での分極反転構造が針先状に尖っていることによる効率の低減が大きく現れたためと考えられる。そこで、このデバイスの結晶表面付近を研磨して取り去り、再度導波路を作製して実験を行うと、青色のSH光を比較的効率良く得ることができた。色々なチャンネルにポンプ光を結合してSHG実験を行い、グレーティング周期と1次QPMによるSH光波長の関係を調べた結果を図6.5に示す。以下には、グレーティング周期3.25 μm を持つチャンネルで行った実験の結果を示す。ポンプ光とSH光の波長は図6.5からもわかるようにそれぞれ0.886 μm と0.443 μm であった。その近視野像と強度分布を図6.6に示す。強度分布の半値全幅は、導波路幅方向で1.2 μm 、深さ方向で0.8 μm であった。SHG変換効率のポンプ光パワー依存性の測定結果を図6.7に示す。SHG相互作用長3.3mmに対して規格化

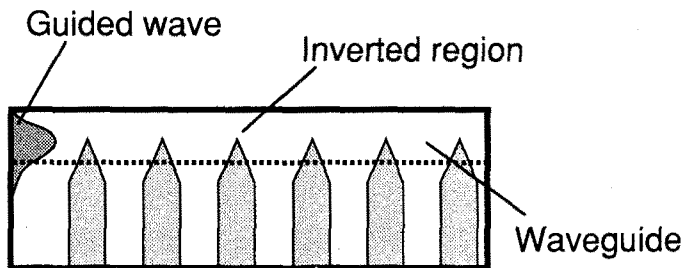


図6.4 電子ビーム走査法で表面研磨せずに作製した青色光発生用分極反転グレーティングの断面構造

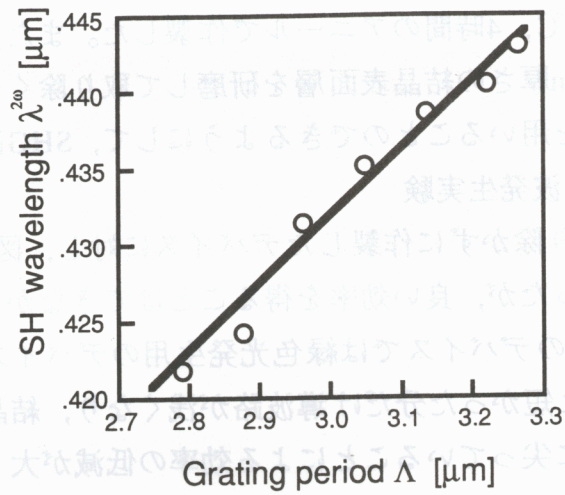


図6.5 1次QPM-SH波長のグレーティング周期依存性

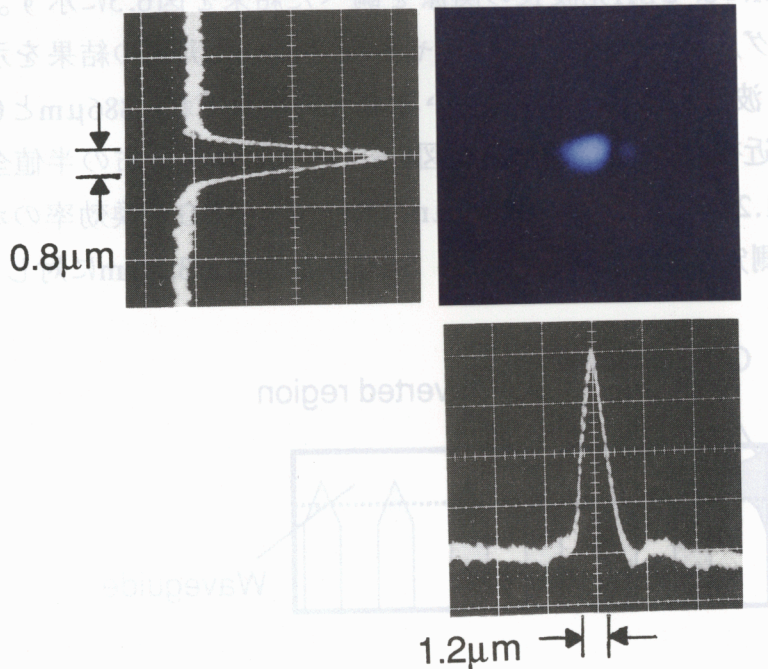


図6.6 SH光近視野像 (波長0.443 μm)

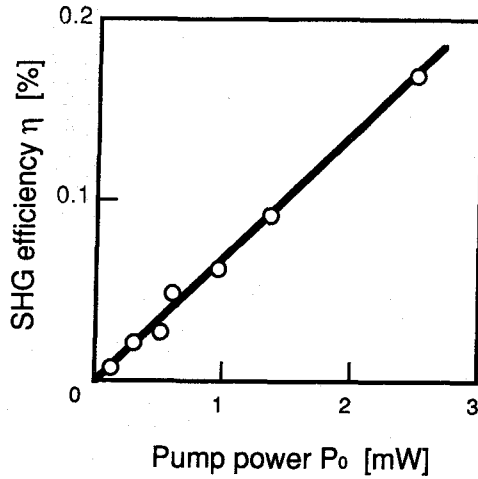


図6.7 SHG変換効率のポンプ光パワー依存性

変換効率として70%/Wが得られた。また、ポンプ光の波長をスキャンしてこの導波路でのSH光パワー（ポンプ光パワーが波長に依存しないとするとSHG変換効率に対応する）の波長依存性を調べた。その結果を図6.8に示す。メインローブの他に長波長側にピークが現れているが、これは、作製した導波路がSH光に対してマルチモードとなってしまったために、ポンプ光が高次導波モードのSH光と結合して生じたSHGによるものと考えられる。メインローブでのSHG変換効率の波長に関する受容半値全幅は0.76nmであった。

6.3.3 理論値との比較検討

波長受容半値全幅を式(4.3)と(4.7)から求めると、0.6nmであった。これは実験値と良く一致しており、このことは、作製した分極反転グレーティングの周期の均一性がよいことを示している。

図4.9から、グレーティングのデューティ比が0.2のときの理論SHG変換効率を求めると140%/Wであり、マルチモードポンプの効果を含めると280%/Wとなる。実験値70%/Wはこれに比べるとかなり小さい。これは、実際に電子ビーム走査により作製した周期3 μ mの分極反転グレーティングの反転構造が、計算に

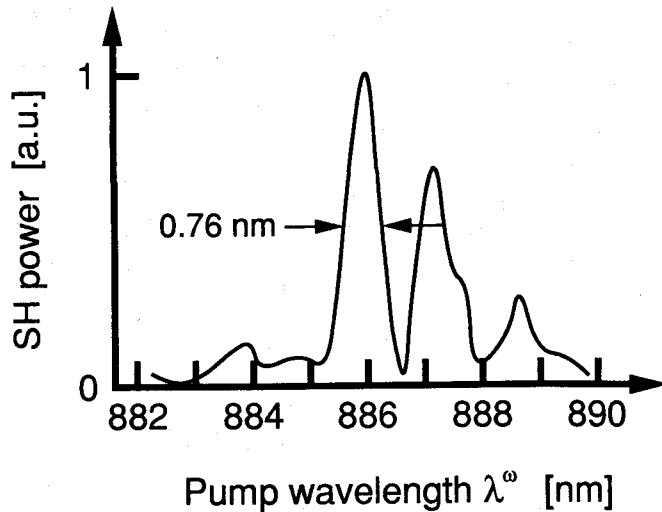


図6.8 SH光パワーのポンプ光波長依存性

用いた図4.6(a)に示した隣接円状モデルと異なっていたためだと考えられる。

6.3.4 光損傷の影響

図6.7よりわかるように、ポンプ光パワーで3mW、SH光パワーで5 μ W程度までの範囲ではSHG変換効率がポンプ光パワーに比例しており、式(4.7)どおりの依存性を示した。しかし、別のデバイスに対し同様の測定を行うと、図6.9に示すようなSHG変換効率のポンプ光パワー依存性を示した。ポンプ光パワーが大きいところでSHG変換効率の大きな低減が見られる。これは、光損傷による屈折率変化で、位相整合状態が変化したためと考えられる。しかし、プロトン交換導波路の光損傷閾値(35kW/cm²)に比べると、得られているSH光強度はかなり小さい(~30W/cm²)。可能性の一つとして、これは、プロトン交換中やアニール処理中などにLiNbO₃結晶中に不純物が混入し、光損傷の影響を受けやすくなったためではないかと考えられる。もし光損傷の影響であるとする、アニール時の雰囲気コントロールのような汚染対策を厳しく施すことにより、光損傷の影響はかなり低減できると考えている。

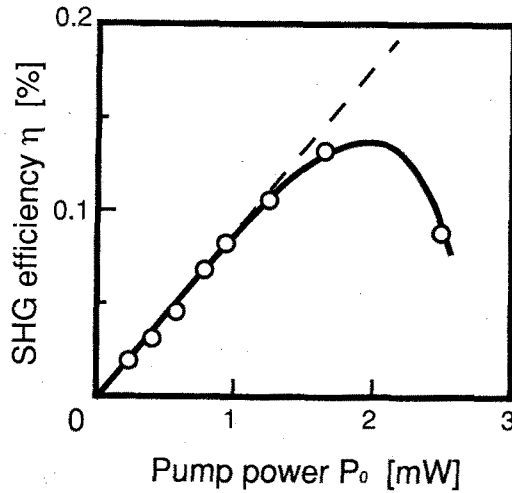


図6.9 SHG変換効率のポンプ光パワー依存性

6.4 結言

周期 $3\mu\text{m}$ 程度の分極反転構造を必要とする青色光発生用1次QPM-SHGデバイスを、 SiO_2 装荷誘起分極反転法と電子ビーム走査分極反転法を用いて作製したが、どちらもグレーティングと導波光の重なりが大きくとれず、高効率SHGを達成できなかった。

しかし、電子ビーム走査を用いて分極反転グレーティングを作製した後、表面層を研磨して取り除いたデバイスを試作し、 $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザを用いた実験で青色のSH光を得ることができた。相互作用長 3.3mm に対して、得られた規格化SHG変換効率は $70\%/W$ であった。これは、これまでに報告された LiNbO_3 導波路形第2高調波発生デバイスでの青色光発生実験の結果^{20),22),23)}を大きく上回るものであり、青色光発生SHGデバイス作製に対して電子ビーム走査分極反転法が適していることがわかった。しかし、得られた変換効率は理論値の $1/4$ 程度であった。これは、計算に用いた分極反転構造のモデルが実際の分極反転構造にあまり適していなかったためと考えられる。より詳細な評価のためには、さらに理論的・実験的な検討が必要である。ポンプ光の波長変動に対するSHG

受容半値全幅は0.76nmであった。この波長受容幅は、温度変動のあまりないときの半導体レーザ発振波長の揺らぎよりも大きく、この結果は、半導体レーザポンプSHG実験の可能性を示唆するものである。

第7章 半導体レーザー光の第2高調波発生用デバイスの作製と評価

7.1 緒言

第6章で述べたように、電子ビーム走査分極反転法を用いて作製したデバイスで、Ti:Al₂O₃レーザーからの近赤外ポンプ光のSHG実験で良好な結果が得られた。このデバイスは、ポンプ光波長がTi:Al₂O₃レーザーと同程度の0.8 μ m帯半導体レーザー光を用いたSHG実験にも適用できる。

本章では、電子ビーム走査分極反転法を用いて0.8 μ m帯半導体レーザー光用のSHGデバイスを作製し、実験を行った結果について述べる。

7.2 Ti:Al₂O₃レーザーによる予備実験

半導体レーザーポンプSHG実験用に周期が3.3 μ m \pm 10%の扇形分極反転グレーティングを持つSHGデバイスを作製した。デバイス作製条件は6.3.1で述べたものと同じである。

まず、Ti:Al₂O₃レーザーによる予備実験を行った。実験の方法は6.3で述べたものと同じである。図7.1にSH光波長の分極反転グレーティング周期依存性を、図7.2にSH光パワーのポンプ光波長依存性を示す。図7.2より、SH変換効率は理論通りにポンプ光波長に対してsinc²関数依存性を示しており、その半値全幅が0.73nmであることがわかる。これらの結果より、このデバイスで半導体レーザーを用いたSHG実験が行える見通しが得られた。なお、規格化変換効率として70%/Wが得られた。

7.3 半導体レーザー光の第2高調波発生実験

図7.3に示す実験光学系により半導体レーザー光の第2高調波発生実験を行った。実験に用いた半導体レーザーの発振波長は0.865 μ mであった。半導体レーザーの出射光は偏光方向に対して平行な方向のビームの拡がり角が垂直な方向に比べて小さい。これをレンズで集光して導波路内に効率良くTM-likeモードを励振す

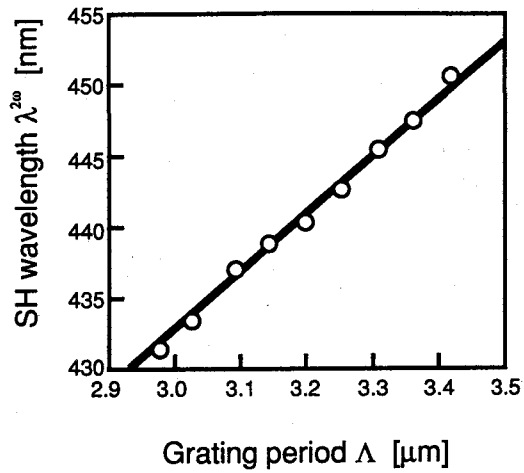


図7.1 Ti:Al₂O₃レーザによる予備実験でのSH光波長のグレーティング周期依存性

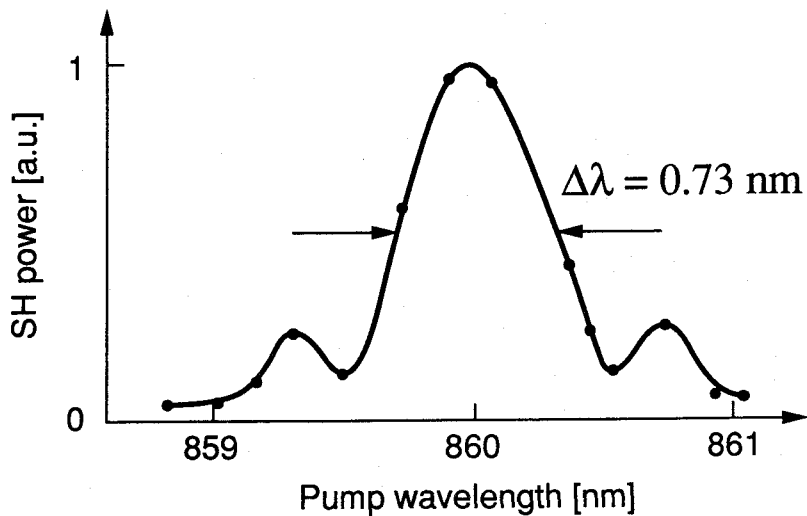


図7.2 Ti:Al₂O₃レーザによる予備実験でのSH光強度のポンプ光波長依存性

るため、 $\lambda/2$ 板を挿入して偏光方向を回転させて入射した。デバイスを光軸に

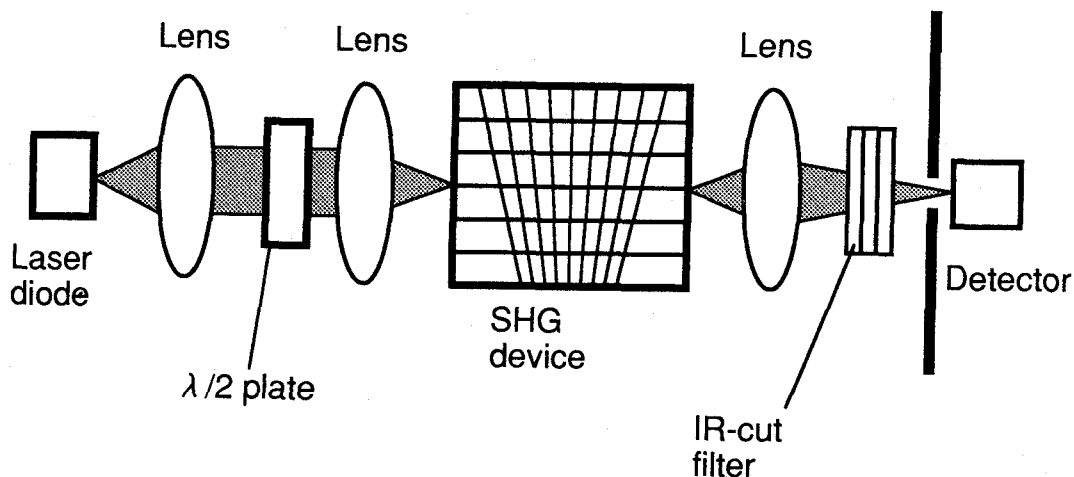


図7.3 半導体レーザポンプSHG実験光学系

対して横方向にシフトして、順次チャネルを選択したときの出力SH光パワーの変化をモニタした結果を図7.4に示す。グレーティング周期が $3.022\mu\text{m}$ のチャネルで最大のSH光パワーが得られていることがわかる。このチャネルでのSH光の近視野像とその強度分布を図7.5に示す。強度の半値全幅は導波路幅方向に $1.2\mu\text{m}$ 、深さ方向に $0.9\mu\text{m}$ であった。SHG変換効率のポンプ光パワー依存性を図7.6に示す。比較のため、 $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザを用いた場合の結果も同時に示した。半導体レーザポンプで規格化変換効率として相互作用長 3.3mm に対して $50\%/W$ の良好な結果が得られた。しかし、この結果は $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザの場合の7割程度である。この性能低減の原因ははっきりしていなが、波長調整により完全な位相整合条件の得られる $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ レーザでの実験と異なり、半導体レーザでの実験では扇形分極反転グレーティング構造を用いても補償しきれない僅かな位相整合誤差が存在するので、その影響で効率低減が生じたのではないかと考えられる。また、SH光パワーを2時間に渡って測定し、SHGの安定性を調べた結果を図7.7に示す。SH光パワーの変動は10%程度に抑えられていることが

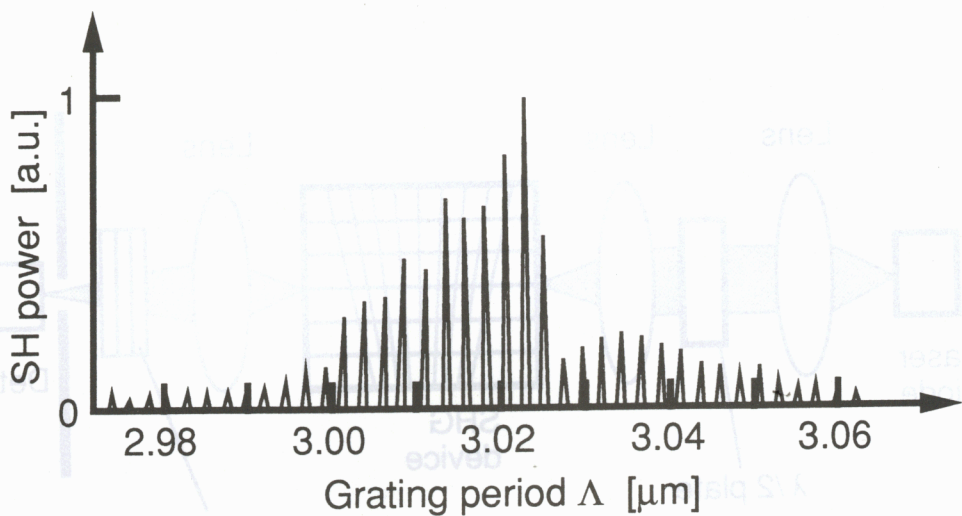


図7.4 SH光パワーのグレーティング周期依存性

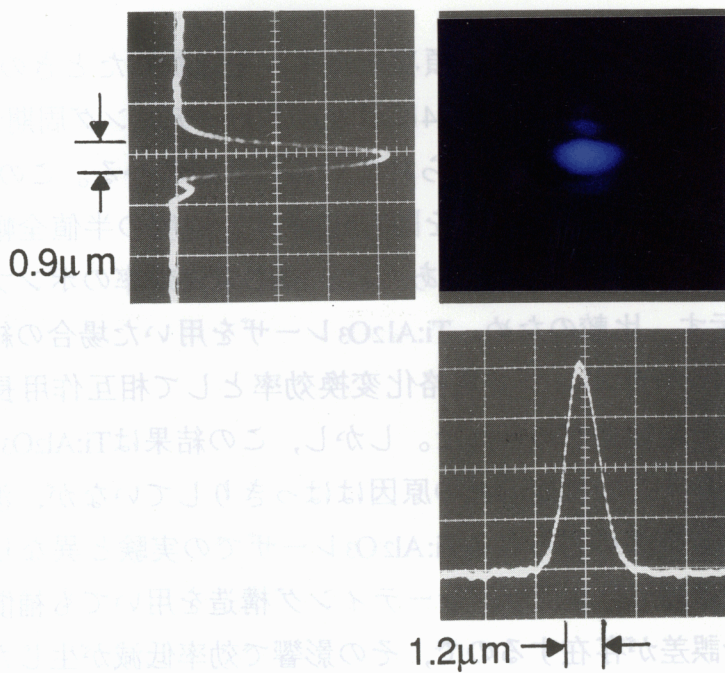


図7.5 SH光の近視野像 (波長 $0.433\mu\text{m}$)

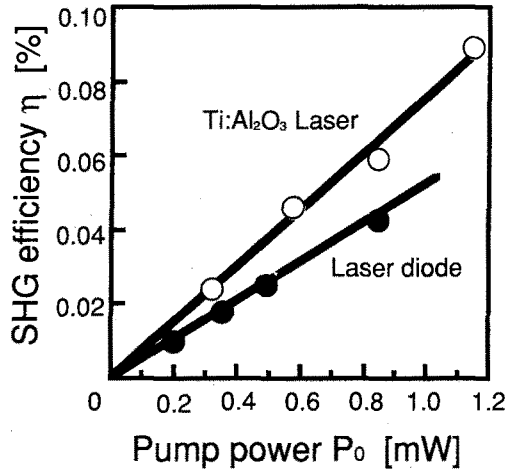


図7.6 SHG変換効率のポンプ光パワー依存性

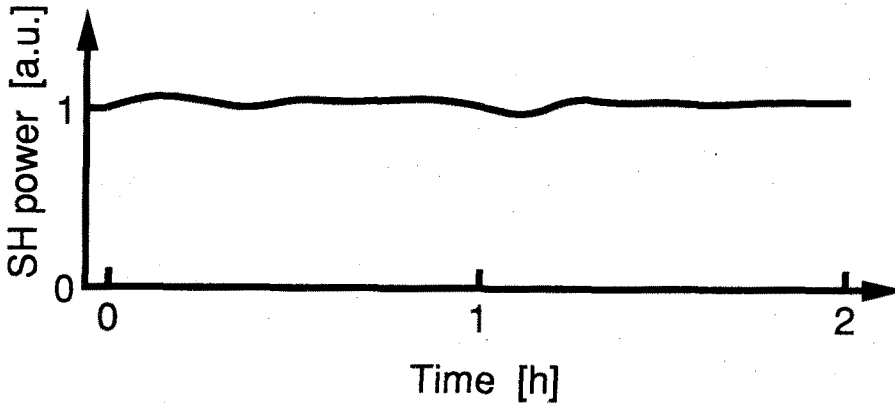


図7.7 SH光パワーの経時変化

わかる。なお、この実験では特別な温度制御は行わなかった。

7.4 結言

電子ビーム走査分極反転法により作製したデバイスで半導体レーザを光源と

して用いたSHG実験を行い、規格化変換効率として50%/Wの良好な結果を得た。また、温度制御なしに行った2時間に渡るSH光パワー測定においてその変動は10%程度であり、安定なSHG動作が確認できた。

これらの結果より、半導体レーザを用いた青色発光デバイスモジュールの実現に対する見通しを得た。しかし、実用化のためには、大きな環境条件の変動にも耐え得るようにSHGの位相整合の状態をフィードバックして常に完全な位相整合状態が維持できるようにするための工夫が必要である。例えば、図7.8のような、ペルチェ素子を用いてデバイスと半導体レーザの温度制御を行うデバイスモジュールを今後検討して行きたい。

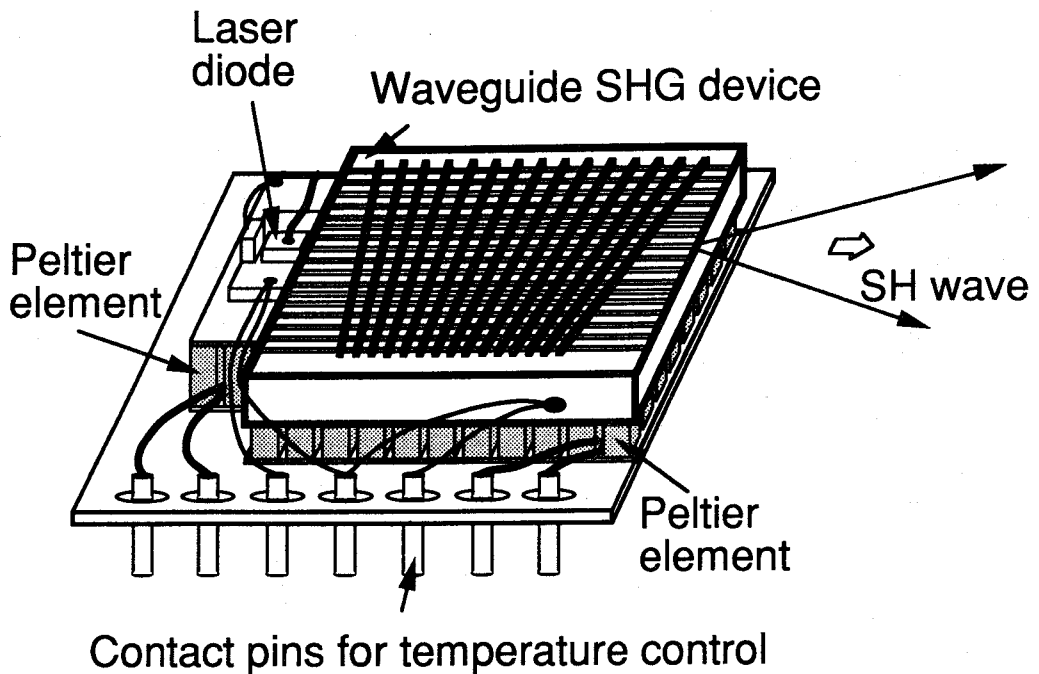


図7.8 温度制御機能付導波路SHGデバイスを用いた小型短波長発光モジュール

第8章 結論

光記録の高密度化や小型レーザのフルカラー化のために求められている小型短波長コヒーレント光源を実現するデバイスとして、導波路形第2高調波発生デバイスを取り上げ、理論的・実験的検討を行い、いくつかの成果を得ることができた。本研究において得られた結果および考察した課題を以下に改めて要約して述べ、本論文の結論とする。

第2章では、導波路形第2高調波発生デバイス作製において最も重要な技術であるLiNbO₃分極反転グレーティング作製法として、本研究で新たに見出されたSiO₂装荷と熱処理による方法とその特徴について述べた。

- (1)この方法によれば、簡単に、広い熱処理条件の下、再現性良く分極反転グレーティングを作製できることを明らかにした。
- (2)作製可能な分極反転グレーティング最小周期は2 μm 以下であるが、周期が3 μm 以下のときには作製の再現性が低下することがわかった。

第3章では、電子ビーム走査分極反転グレーティング作製法の導波路形SHGデバイス作製への適用を初めて検討した。

- (1)電子ビーム走査で作製した分極反転領域は結晶裏面まで達するほど深く、その構造は結晶表面付近では針先のように尖っているが、結晶内部では深さ方向に対してほぼ一様であった。一方、分極反転は電子ビーム走査方向に対してつながって起こらず、粒塊状に寸断されて起こる傾向があることがわかった。分極反転幅の制御法はまだ確立されておらず、グレーティングのデューティ比は0.2程度のものしか得られなかった。
- (2)分極反転グレーティング作製のためには、電子ビームにより照射する電子の線電荷密度に適正範囲が存在することを明らかにした。また、この適正範囲がグレーティング周期に依存すること、作製可能最小周期が2.5 μm 以下であることを明らかにした。

(3)分極反転のメカニズムは明らかでないが、一つの説明として、電子ビーム照射により結晶表面付近に侵入した電子が結晶内部に誘起する電界が原因であるとする考えについて述べた。

第4章では、導波光モードプロファイルと分極反転構造を考慮した導波路形第2高調波発生デバイス性能の理論解析手法を確立するとともに、残留位相整合誤差を補償するデバイス設計の手順を確立した。

- (1)理想的分極反転構造を仮定し、導波路サイズに対するSHG変換効率依存性を明らかにした。導波路サイズが小さいほど導波光パワー密度が向上し、高効率を得られることがわかった。
- (2)SiO₂装荷誘起分極反転構造を数式で表現して、その反転構造を持つSHGデバイスの変換効率の計算を行った。分極反転領域が結晶表面近くに限られるための性能の低減が特に微細周期分極反転グレーティングを必要とするデバイスで顕著に生じることがわかった。
- (3)電子ビーム走査による分極反転構造を数式で表現して、その反転構造を持つSHGデバイスの変換効率の計算を行った。分極反転が寸断されていることの影響は大きくはないが、グレーティングデューティ比の最適化ができないことによる効率低減が大きいことがわかった。
- (4)擬似位相整合SHGデバイスにおいて生じる残留位相整合誤差を補償するデバイス構成を示し、その設計を行った。

第5章では、実際に作製したデバイスで、波長1.064 μ mのNd:YAGレーザー光を用いた緑色光発生SHG実験を行った結果について述べた。

- (1)SiO₂装荷誘起分極反転法を用いて作製したデバイスで、相互作用長4mmに対して規格化SHG変換効率45%/W、電子ビーム走査分極反転法で作製したデバイスで相互作用長3.3mmに対して50%/Wを得た。これらの値は、他の分極反転法を用いたデバイスで報告されている値よりも大きく、これらの分極反転法のいずれもが緑色光発生用SHGデバイスの作製に適していることがわかった。また、理論効率との比較で、SiO₂装荷分極反転

法で得られる分極反転領域の断面構造は、エッチングの断面構造とは異なり矩形に近い形状で、エッチングの深さよりも深いことが示唆された。第6章では、波長可変Ti:Al₂O₃レーザを用いた青色光発生SHG実験での結果について述べた。

- (1) SiO₂装荷誘起分極反転法を用いて作製したデバイスでは良い効率が得られなかった。これは、第4章で理論的に予想したことを裏付ける。
- (2) 電子ビーム走査分極反転を用いて作製したデバイスでは、グレーティング作製後、結晶表面を研磨することで相互作用長3.3mmに対して70%/Wの規格化SHG変換効率を達成できた。この値は、LiNbO₃青色光発生導波路形SHGデバイスとしては極めて良い値であり、電子ビーム走査分極反転法の青色光発生SHGデバイス作製に対する有用性を示している。
- (3) 光損傷の影響と思われる効率低減も観測された。

第7章では、電子ビーム走査分極反転法を用いて作製したデバイスによる、波長0.8 μ m帯の半導体レーザを用いたSHG実験の結果について述べた。

- (1) Ti:Al₂O₃レーザによる予備実験で、ポンプ光波長に対する受容幅0.73 μ mと、相互作用長3.3mmに対して規格化変換効率70%/Wを得た。
- (2) 半導体レーザを用いたSHG実験を行い、規格化変換効率50%/Wの良好な結果を得た。また、特別な温度制御を施すことなく、SH光パワーを2時間に渡って測定し、そのパワー変化が10%程度に抑えられていることがわかった。

本研究で得られた成果より、LiNbO₃QPM-SHGデバイスによる小型コヒーレント光源実現の見通しを得ることができた。しかし、実用化のためにはまだいくつかの課題が残されている。電子ビーム走査分極反転法で作製する分極反転グレーティングのデューティ比改善は、デバイス高効率化への最重要課題である。また、プロトン交換導波路における、導波光閉じ込め、光損傷の影響、表面付近の分極反転構造の消滅、SHG係数dの低減などの検討課題も残されている。さらに、デバイス安定動作のためには位相整合状態のフィードバック技術

を確立する必要がある。

一方、 SiO_2 分極反転法では、周期が粗い分極反転グレーティングとしては均一で導波路との重なりも十分な良いものが得られるので、差周波発生デバイスのような周期の粗い分極反転グレーティングを必要とするデバイスへの応用の検討を行うと良いと考えられる。

本研究で確立された分極反転の技術は、SHGデバイスに留まらず、圧電性を利用するデバイスや、電気光学効果を利用するデバイスへの応用も可能であり、多くの光デバイスへの波及効果を期待することができる。

謝辞

本研究を行うに際し、終始懇切な御指導、御鞭撻を賜った大阪大学西原浩教授、終始一貫して直接御指導頂いた栖原敏明助教授に深甚なる感謝の意を表します。

論文作製にあたり、懇篤なる御指導を頂くとともに種々の御高配を賜った大阪大学工学部裏克己教授、吉野勝美教授に深謝の意を表します。

さらに、著者が大阪大学に在学中、御指導と御教授を賜った大阪大学工学部浜口智尋教授、尾浦憲治郎教授、児玉慎三教授、寺田浩詔教授、白川功教授、藤岡弘教授、ならびに大阪大学産業科学研究所溝口理一郎教授に深謝の意を表します。

電子ビーム走査による LiNbO_3 分極反転のメカニズムについて御討論頂いた東北大学伊藤弘昌助教授、半導体レーザを提供して頂いた三洋電機半導体研究所山口隆夫氏、吉年慶一氏に感謝の意を表します。

本研究を行うに当たって、終始有益なる御指導を頂いた西原研究室春名正光助教授、裏升吾博士に心から感謝の意を表します。また、本研究の各過程において協力頂いた金高健二氏に感謝します。

本研究は、文部省科学研究費補助金特別研究員奨励金（平成4年度）の援助を受けた。

参考文献

- [1] Proc. Topical Meeting on Compact Blue-Green Lasers, Santa Fe (1992).
- [2] M.A.Haase, J.Qiu, J.M.De Puydt and H.Cheng : "Blue-green laser diodes," Appl. Phys. Lett., vol.59, pp.1272-1274 (1991).
- [3] J.M.De Puydt, M. A. Haase, J.Qiu and H.Cheng : "ZnSe-based laser diode," Fifth International Conf. in II - VI Compounds, L5, Tamano (1991).
- [4] 末宗 : "青色半導体レーザー：最近の話題", O plus E, No.145, pp.118-124 (1991).
- [5] J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing and P.S.Pershan : "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," Phys. Rev., vol. 127, pp.1918-1939 (1962)
- [6] 近藤, 小笠原, 伊藤 : "波長変換への応用," オプトロニクス, No.98, pp.132-139 (1990).
- [7] 藤堂 : "実用化迫る青色SHGレーザー," 日経ニューマテリアル, 1990年8月20日号, pp.60-68 (1990).
- [8] F.Tong, W.P.Risk, R.M.Maclarlane and W.Lenth : "551 nm diode-laser-pumped upconversion laser," Electron. Lett., vol.25, pp.1389-1391 (1989).
- [9] T.Tamir : "Integrated Optics," Springer Verlag (1975).
- [10] 西原, 春名, 栖原 : "光集積回路," オーム社 (1985).
- [11] W.Sohler, H.Sushe : "Second-harmonic generation in Ti-diffused LiNbO₃ optical waveguides with 25 % conversion efficiency," Appl. Phys. Lett., vol.33, pp.518-520 (1978).
- [12] N.Uesugi and T.Kimura : "Efficient second-harmonic generation in three dimensional LiNbO₃ optical waveguide", Appl. Phys. Lett., vol.29, pp.572-574 (1976).

- [13] N.Uesugi, K.Daikoku and K.Kubota : "Electric field tuning of second-harmonic generation in a three-dimensional LiNbO_3 optical waveguide", *Appl. Phys. Lett.*, vol.34, pp.60-62 (1979).
- [14] R.Regener and W.Sohler : "Efficient second-harmonic generation in Ti:LiNbO_3 channel waveguide resonators," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol.5, pp.267-277 (1988).
- [15] M.De Micheli, J.Botineau, S.Neveu, P.Sibillot, D.B.Ostrowsky and M.Papuchon : "Extension of second-harmonic phase-matching range in lithium niobate guides", *Opt. Lett.*, vol.8, pp.116-118 (1983).
- [16] G.Tohmon, K.Yamamoto and T.Taniuchi : "Blue light source using guided-wave frequency doubler with a diode laser", *Proc. SPIE*, 898, pp.70-75, (1988).
- [17] M.J.Li, M.De Michelli, Q.He and D.B.Ostrowsky : "Cerenkov configuration second harmonic generation in proton-exchanged lithium niobate guides," *J. Quantum Electron.*, vol.QE-26, pp.1384-1393 (1990).
- [18] 張, 伊藤, 稲葉 : "周期ドメイン反転構造を持つ非線形光導波路による第2高調波発生" 応物学会講演会, 7a-ZD-9, (1988)
- [19] J.Webjorn, F.Laurell and G.Arvidsson : "Fabrication of periodically domain-inverted channel waveguides in lithium niobate for second harmonic generation," *J.Lightwave Technology*, vol. 7, pp.1597-1600 (1989).
- [20] E.J.Lim, M.M.Fejer, R.L.Byer and W.J.Kozlovsky : "Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide," *Electron. Lett.*, vol.25, pp.731-732 (1989).
- [21] Y.Ishigame, T.Suhara and H.Nishihara : " LiNbO_3 waveguide second-harmonic generation device phase matched with a fan-out domain-inverted grating," *Opt. Lett.*, vol.16, pp.375-377 (1991).

- [22] X.Cao, B.Rose, R.V.Ramaswamy and R.Srivastava : " Efficient direct diode-laser frequency doubling in quasi-phase-matched LiNbO₃ waveguides," Opt.Lett, vol.17, pp.795-797 (1992).
- [23] J.Webjorn, F.Laurell and G.Arvidsson : "Blue light generation by frequency doubling of laser diode light in a lithium niobate channel waveguide," Photon. Technol. Lett., vol.1, pp.316-318 (1989).
- [24] M.Fujimura, T.Suhara and H.Nishihara : "Ferroelectric-domain inversion induced by SiO₂ cladding for LiNbO₃ waveguide SHG," Electron. Lett., vol.27, pp.1207-1208 (1991).
- [25] 藤村, 栖原, 西原 : "SiO₂ 装荷誘起分極反転を用いた擬似位相整合LiNbO₃ 導波形SHG デバイス," 信学会論文誌C-I, vol.J75-C-I, pp.489-496 (1992).
- [26] M.Fujimura, T.Suhara and H.Nishihara : " LiNbO₃ waveguide SHG device with ferroelectric-domain-inverted grating formed by electron-beam scanning," Electron. Lett., vol.28, pp.721-722 (1992).
- [27] M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara and H.Nishihara : " Blue light generation in LiNbO₃ waveguide SHG device with first order domain-inverted grating formed by EB scanning," Electron. Lett., vol.28, pp.1868-1869 (1992).
- [28] M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide quasi-phase-matching second harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings formed by electron-beam scanning," J. Lightwave Technology (投稿中) .
- [29] H.Endoh, Y.Sampey Y.Miyagawa : "New method of domain inversion in LiNbO₃ using thermal oxidation of Ti film," Electron. Lett., vol.28, pp.1594-1596 (1992).

- [30] M. Yamada, N. Nada and K. Watanabe : "Fabrication of periodically reversed domain structure for second-harmonic generation in LiNbO₃ by applying voltage," Integrated Photonics Research Topical Meeting (IPR'92), TuC2-1, New Orleans (1992).
- [31] K. Mizuuchi, K. Yamamoto and T. Taniuchi : "Second-harmonic generation of blue light in a LiTaO₃ waveguide," Appl. Phys. Lett., vol.58, pp.2732-2734 (1991).
- [32] S. Matsumoto, E.J. Lim, H.M. Hertz and M.M. Fejer : "Quasiphase-matched second harmonic generation of blue light in electrically periodically-poled lithium tantalate waveguides," Electron. Lett., vol.27, pp.2040-2041 (1991).
- [33] K. Mizuuchi and K. Yamamoto : "Highly efficient quasi-phase-matched second-harmonic generation using a first-order periodically domain-inverted LiTaO₃ waveguide," Appl. Phys. Lett., vol.60, pp.1283-1285 (1992).
- [34] S. Kurimura, M. Miura and I. Sawaki : "New method of 20 μ m-deep and 3.6 μ m-periodic domain-inversion for 1st-order quasi-phase matching SHG in LiTaO₃ waveguides," Conf. on lasers and electro-optics (CLEO'92), CPD5, Anaheim (1992).
- [35] K. Yamamoto and K. Mizuuchi : "Blue-light generation by frequency doubling of a laser diode in a periodically domain-inverted LiTaO₃ waveguide," Photon. Technol. Lett., vol.4, pp.435-437 (1992).
- [36] J.D. Bierlein, D.B. Laubacher and J. B. Brown : "Balanced phase matching in segmented KTiOPO₄ waveguides," Appl. Phys. Lett., vol.56, pp.1725-1727 (1990).
- [37] C.J. van der Poel, J.D. Bierlein, J.B. Brown, S. Colak : "Efficient type I blue second-harmonic generation in periodically segmented KTiOPO₄ waveguides," Appl. Phys. Lett., vol.57, pp.2074-2076 (1990).

- [38] B.F.Levine, C.G.Bethea, C.D.Thurmond, R.T.Lynch and J.L.Bernstein ;"An organic crystal with an exceptionally large optical second-harmonic coefficient: 2-methyl-4-nitroaniline," J. Appl. Phys., vol.50, pp.2523-2527 (1979).
- [39] O.Sugihara and K.Sasaki : "Phase-matched second-harmonic generation in a 2-methyl-4-nitroaniline single crystal waveguide: combined structure of grating couplers and four-layer waveguide," J. Opt. Soc. Am. B, vol.9, pp.104-107 (1992).
- [40] S.Somekh and A.Yariv : "Phase-matchable nonlinear optical interactions in periodic thin films," Appl. Phys. Lett., vol.21, pp.140-141 (1972).
- [41] T. Suhara and H. Nishihara : "Theoretical Analysis of waveguide second-harmonic generation phase matched with uniform and chirped gratings," J. Quantum Electron., vol.26, pp.1265-1276 (1990).
- [42] S. Miyazawa : "Ferroelectric domain inversion in Ti-diffused LiNbO₃ optical waveguide," J. Appl. Phys., vol.50, pp.4599-4603 (1979).
- [43] K.Nakamura, H.Ando and H.Shimizu : "Ferroelectric domain inversion caused in LiNbO₃ plates by heat treatment," Appl. Phys. Lett., vol.50, pp.1413-1414 (1987).
- [44] P.W.Haycock and P.D.Townsend : "A method of poling LiNbO₃ and LiTaO₃ below T_c," Appl. Phys. Lett., vol.48, pp.698-700 (1986).
- [45] R.W. Keys, A.Loni, R.M.De La Rue, C.N.Ironside, J.H.Marsh, B.J.Luff and P.D. Townsend : "Fabrication of domain reversed gratings for SHG in LiNbO₃ by electron beam bombardment," Electron. Lett., vol.26, pp.188-190 (1990).
- [46] M.Yamada and K.Kishima, "Fabrication of periodically reversed domain structure for SHG in LiNbO₃ by direct electron beam lithography at room temperature," Electron. Lett., vol.27, pp.828-829 (1991).

- [47] H.Ito, C.Takyu and H.Inaba, "Fabrication of periodic domain grating in LiNbO₃ by electron beam writing for application of nonlinear optical processes," *Electron. Lett.*, vol.27, pp.1221–1222 (1991).
- [48] A.C.G.Nutt, V.Gopalan and M.C.Gupta : "Domain inversion in LiNbO₃ using direct electron–beam writing," *Appl.Phys.Lett.*, vol.60, pp.2828–2830 (1992).
- [49] G.Janzen, H.Seibert and W.Sohler : "Electric field induced ferroelectric microdomain inversion on X– and Y–cut lithium niobate," *Integrated Photonics Research Topical Meeting (IPR'92)*, TuC2–1, New Orleans (1992).
- [50] L.L.Pendergrass : "Ferroelectric microdomain reversal at room temperature in lithium niobate," *J. Appl. Phys.*, vol.62, pp.231–236 (1987).
- [51] K.Nassau, H.J.Levinstein and G.M.Loiacono : "Ferroelectric lithium niobate. 1.growth, domain structure, dislocations and etching," *J. Phys. Chem. Solids*, vol.27, pp.983–988 (1966).
- [52] N.Niizeki, T.Yamada and H.Toyoda : "Growth ridges, etched hillocks, and crystal structure of lithium niobate," *Jap. J. Appl. Phys.*, vol.6, pp.318–327 (1967).
- [53] Y.S.Kim and R.T.Smith : "Thermal expansion of lithium tantalate and lithium niobate single crystal," *J. Appl. Phys.*, vol.40, pp.4637–4641 (1969).
- [54] I.Camlibel : "Spontaneous polarization measurements in several ferroelectric oxides using pulsed–field method," *J. Appl. Phys*, vol.40, pp.1690–1693 (1969).
- [55] F.T.Arecchi and E.O.Schulz–Doubois : "Laser handbook," North–Holland publishing company (1972).
- [56] E.A.J.Marcatili : "Dielectric rectangular waveguide and directional coupler for integrated optics," *Bell Syst. Tech. J.*, vol.48, pp.2071–2102 (1969).
- [57] J.L.Jackel, C.E.Rice and J.J.Veselka : "Proton exchange for high–index waveguides in LiNbO₃," *Appl. Phys. Lett.*, vol.41, pp.607–608 (1982).

- [58] P.G.Suchoski, T.K.Findakly and F.J.Leonberger : "Stable low-loss proton-exchanged LiNbO₃ waveguide devices with no electro-optic degradation," *Opt. Lett.*, vol.13, pp.1050-1052 (1988).
- [59] A.Loni, R.M.De La Rue and J.M.Winfield : "Very low-loss proton-exchanged LiNbO₃ waveguides with a substantially restored electro-optic effect," *Topical Meeting on Integrated and Guided-Wave Optics (IGWO'88)*, MD-3, Santa Fe (1988).
- [60] D.F.Clark, A.C.G.Nutt., K.K.Wong, P.J.R.Laybourn and R.M.De La Rue : "Characterization of proton-exchange slab optical waveguides in Z-cut LiNbO₃," *J. Appl. Phys.*, vol.54, pp.6218-6220 (1983).
- [61] S. Helmfrid and G. Arvidsson : "Second-harmonic generation in quasi-phase-matching waveguides with a multimode pump," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol.8, pp.2326-2330 (1991).
- [62] M.Digonnet, M.Fejer and R.Byer : "Characterization of proton-exchanged waveguides in MgO-LiNbO₃," *Opt. Lett.*, vol. 10, pp.235-237 (1985).
- [63] T.Suhara, H.Tazaki and H.Nishihara : "Measurement of reduction in SHG coefficient of LiNbO₃ by proton exchanging", *Electron. Lett.*, vol.25, pp.1326-1328 (1989).
- [64] R.W.Keys, A.Loni, R.M.De La Rue: "Measurement of the increase in the SHG coefficient of proton exchanged LiNbO₃ after annealing using a grating diffraction technique", *Electron. Lett.*, vol.26, pp.624-626 (1990).
- [65] X.F.Cao, R.Srivastava, R.V.Ramaswamy and J. Natour: "Recovery of second-order optical nonlinearity in annealed proton-exchanged LiNbO₃," *Photon. Technol. Lett.*, vol. 3, pp.25-27 (1991).
- [66] M.L.Bortz and H.M.Fejer : "Measurement of the second-order nonlinear susceptibility of proton-exchanged LiNbO₃," *Opt. Lett.*, vol.17, pp.704-706 (1992).

- [67] F.Laurell, M.G.Roelofs and H.Hsiung : "Loss of optical nonlinearity in proton-exchanged LiNbO₃ waveguides," Appl. Phys. Lett., vol.60, pp.301-303 (1992).

関連発表文献

[1] 論文, レター

- 1) M.Fujimura, T.Suhara and H.Nishihara : "Ferroelectric-domain inversion induced by SiO₂ cladding for LiNbO₃ waveguide SHG," Electronics Letters, Vol.27, No.13, pp.1207-1208 (1991年6月) .
- 2) M.Fujimura, T.Suhara and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide SHG devices with ferroelectric-domain-inverted grating formed by electron-beam scanning," Electronics Letters, Vol.28, No.8, pp.721-722 (1992年4月) .
- 3) 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "SiO₂装荷誘起分極反転を用いた擬似位相整合LiNbO₃導波形SHGデバイス," 信学会論文誌C-I, Vol.J75-C-I, No.7, pp.489-496 (1992年7月) .
- 4) M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara and H.Nishihara : "Blue light generation in LiNbO₃ waveguide SHG device with first order domain-inverted grating formed by EB scanning," Electronics Letters, Vol.28, No.20, pp.1868-1869 (1992年9月) .
- 5) M.Fujimura, K.Kintaka, T.Suhara and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide quasi-phase-matching second harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings formed by electron-beam scanning," IEEE/OSA Journal of Lightwave Technology (投稿済) .

[2] 国際会議

- 1) M.Fujimura, T.Suhara and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide SHG device with ferroelectric-domain-inverted grating formed by electron-beam scanning," Forth Optoelectronics Conference (OEC'92), 17D3-3, Chiba, (1992年7月) .

- 2) T.Suhara, M.Fujimura and H.Nishihara : "LiNbO₃ waveguide QPM-SHG devices with domain-inverted gratings formed by electron-beam scanning," Third OITDA International FORUM, Ohtsu (1993年 3月 講演予定)
- [3] 研究会
- 1) 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "SiO₂装荷誘起分極反転を用いた擬似位相整合LiNbO₃導波型SHGデバイス," 信学会光・量子エレクトロニクス研究会資料, OQE91-138 (1991年 12月) .
- [4] 学会発表
- 1) 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "SiO₂装荷誘起分極反転によるLiNbO₃導波路SHG用グレーティングの作製," 平成3年春季応物講演会, 28a-SF-14 (1991年 3月) .
- 2) 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "SiO₂装荷誘起分極反転による擬似位相整合LiNbO₃導波路SHGデバイス," 平成3年秋季応物講演会, 11p-ZN-4 (1991年 10月) .
- 3) 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電子ビーム走査によるLiNbO₃SHGデバイス用分極反転グレーティング作製," 平成4年春季応物講演会, 31a-G-4 (1992年 3月) .
- 4) 藤村昌寿, 栖原敏明, 西原浩 : "電子ビーム走査LiNbO₃分極反転を用いた擬似位相整合導波路SHGデバイス," 平成4年春季応物講演会, 31a-G-5 (1992年 3月) .
- 5) 藤村昌寿, 金高健二, 栖原敏明, 西原浩 : "EB走査LiNbO₃分極反転を用いた青色光発生用導波路SHGデバイス," 平成4年秋季応物講演会, 18a-X-6 (1992年 9月) .
- 6) 栖原敏明, 藤村昌寿, 西原浩 : "周期的分極反転導波路における光高調波発生," 平成5年レーザ学会学術講演会 (1993年 1月 講演予定)

[5] 解説記事

- 1) 栖原敏明, 藤村昌寿, 西原浩 : "擬似位相整合による導波形SHG素子," 信学会誌, (掲載予定) .